

## Bibliographic Fields

## Document Identity

(19)【発行国】

日本国特許庁(JP)

(12)【公報種別】

公開特許公報(A)

(11)【公開番号】

特開2000-156290(P2000-156290  
A)

(43)【公開日】

平成12年6月6日(2000. 6. 6)

(19) [Publication Office]

Japan Patent Office (JP)

(12) [Kind of Document]

Unexamined Patent Publication (A)

(11) [Publication Number of Unexamined Application]

Japan Unexamined Patent Publication 2000 - 156290 (P2000 -  
156290A )

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

2000 June 6 days (2000.6 . 6)

## Public Availability

(43)【公開日】

平成12年6月6日(2000. 6. 6)

(43) [Publication Date of Unexamined Application]

2000 June 6 days (2000.6 . 6)

## Technical

(54)【発明の名称】

有機EL素子

(51)【国際特許分類第7版】

H05B 33/14

C09K 11/06 620

635

680

【FI】

H05B 33/14 B

C09K 11/06 620

635

680

【請求項の数】

7

【出願形態】

FD

【全頁数】

143

【テーマコード(参考)】

3K007

(54) [Title of Invention]

**ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT**

(51) [International Patent Classification, 7th Edition]

H05B 33/14

C09K 11/06 620

635

680

【FI】

H05B 33/14 B

C09K 11/06 620

635

680

[Number of Claims]

7

[Form of Application]

FD

[Number of Pages in Document]

143

[Theme Code (For Reference)]

3 K007

## 【F ターム(参考)】

3K007 AB00 AB03 AB06 BB00 BB06 CA01  
CA05 CB01 DA00 DA01 DB03 EB00 FA01  
FA03

## Filing

## 【審査請求】

未請求

## (21)【出願番号】

特願平10-344939

## (22)【出願日】

平成10年11月18日(1998. 11. 18)

## Parties

## Applicants

## (71)【出願人】

## 【識別番号】

000003067

## 【氏名又は名称】

ティーディーケイ株式会社

## 【住所又は居所】

東京都中央区日本橋1丁目13番1号

## Inventors

## (72)【発明者】

## 【氏名】

井上 鉄司

## 【住所又は居所】

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティー  
ディーケイ株式会社内

## (72)【発明者】

## 【氏名】

青谷 淳司

## 【住所又は居所】

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティー  
ディーケイ株式会社内

## Agents

## (74)【代理人】

## 【識別番号】

## [F Term (For Reference)]

3 K007 AB00 AB03 AB06 BB00 BB06 CA01 CA05 CB01  
DA00 DA01 DB03 EB00 FA01 FA03

## [Request for Examination]

Unrequested

## (21) [Application Number]

Japan Patent Application Hei 10 - 344939

## (22) [Application Date]

1998 November 18 days (1998.11. 18)

## (71) [Applicant]

## [Identification Number]

000003067

## [Name]

TDK CORPORATION (DB 69-055-1346)

## [Address]

Tokyo Prefecture Chuo-ku Nihonbashi 1-13-1

## (72) [Inventor]

## [Name]

Inoue iron Osamu

## [Address]

Inside of Tokyo Prefecture Chuo-ku Nihonbashi 1- 1 3-1  
TDK Corporation (DB 69-055-1346 )

## (72) [Inventor]

## [Name]

Aoya Junji

## [Address]

Inside of Tokyo Prefecture Chuo-ku Nihonbashi 1- 1 3-1  
TDK Corporation (DB 69-055-1346 )

## (74) [Attorney(s) Representing All Applicants]

## [Identification Number]

100082865

【弁理士】

【氏名又は名称】

石井 陽一

**Abstract**

(57)【要約】

【課題】

駆動電圧が低く、高効率で、信頼性の高い有機EL素子を提供する。

【解決手段】

本発明の有機EL素子は、この陽極上に直接設けられた発光帯と、陰極とを有し、上記発光層が、テトラアリアルフェニレンジアミン誘導体と、蛍光性物質とを含有する。

または、本発明の有機EL素子は、陽極と、この陽極上に直接設けられた発光帯と、陰極とを有し、上記発光層が、ポリチオフェンまたはチオフェン誘導体と、蛍光性物質とを含有する。

**Claims**

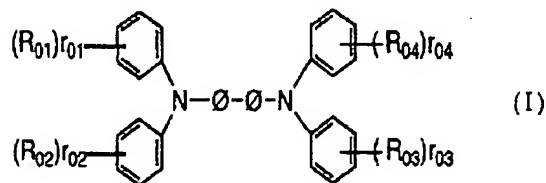
【特許請求の範囲】

【請求項 1】

陽極と、この陽極上に直接設けられた発光帯と、陰極とを有し、

上記発光帯が、下記式(I)で表される骨格を有する化合物と、蛍光性物質とを含有する有機EL素子。

【化 1】



〔式(I)において、φはフェニレン基を表し、R<sub>01</sub>、R<sub>02</sub>、R<sub>03</sub>およびR<sub>04</sub>は、それぞれジアリアルアミノフェニレン基、〕

【化 2】

100082865

[Patent Attorney]

[Name]

Ishii Yoichi

(57) [Abstract]

[Problems to be Solved by the Invention]

drive voltage is low, with high efficiency, offers organic electroluminescent element where reliability is high.

[Means to Solve the Problems]

As for organic electroluminescent element of this invention, it possesses light emitting band and the cathode which are directly provided on this anode, above-mentioned luminescent layer, contains tetra aryl phenylenediamine derivative and fluorescence substance .

Or, as for organic electroluminescent element of this invention, it possesses light emitting band and the cathode which are directly provided on anode and this anode, the above-mentioned luminescent layer, contains polythiophene or thiophene derivative and fluorescence substance .

[Claim(s)]

[Claim 1]

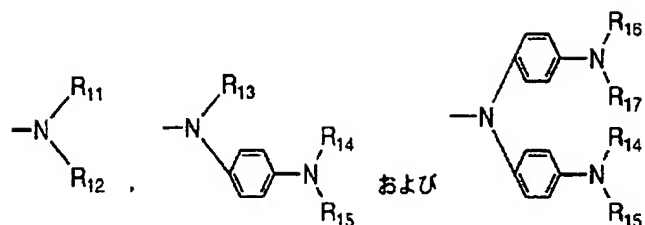
light emitting band and cathode which are provided directly on anode and this anode possessing,

Above-mentioned light emitting band, organic electroluminescent element. which contains compound and fluorescence substance which possess skeleton which is displayed with the below-mentioned Formula (I )

[Chemical Formula 1]

{In Formula (I ), the φ to display phenylene group, as for R<sub>01</sub>、R<sub>02</sub>、R<sub>03</sub> and the R<sub>04</sub>, respective diaryl amino phenylene group、 }

[Chemical Formula 2]



のいずれかを表し、

$r_{01}$ 、 $r_{02}$ 、 $r_{03}$  および  $r_{04}$  は、それぞれ 0~5 の整数であり、

$r_{01}+r_{02}+r_{03}+r_{04}$  は 1 以上である。

$R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  および  $R_{17}$  は、それぞれ、置換または非置換のアリール基を表す。

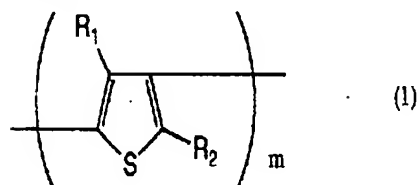
]

#### 【請求項 2】

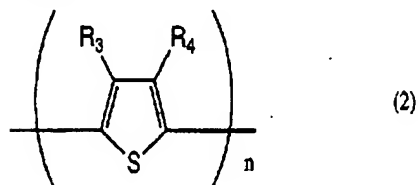
陽極と、この陽極上に直接設けられた発光帯と、陰極とを有し、

上記発光帯が、下記式(1)で示される構造を有する化合物、下記式(1)で示される構造と下記式(2)で示される構造とを有する化合物および下記式(2)で示される構造を有する化合物のうちの少なくとも 1 種以上と、蛍光性物質とを含有する有機 EL 素子。

#### 【化 3】



#### 【化 4】



〔式(1)において、 $R_1$  および  $R_2$  は、それぞれ水素原子、芳香族炭化水素基または脂肪族炭化水素基を表し、 $m$  は 1~100 である。式(2)におい

any displaying,

$r_{01}$ 、 $r_{02}$ 、 $r_{03}$  and  $r_{04}$  respectively with integer 0 - 5,

$r_{01}+r_{02}+r_{03}+r_{04}$  is 1 or more.

$R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  and  $R_{17}$ , respectively, display aryl group of substituted or unsubstituted.

)

#### [Claim 2]

light emitting band and cathode which are provided directly on anode and this anode possessing,

Above-mentioned light emitting band, at least 1 kind among compound which possess structure which is shown with compound and the below-mentioned Formula (2) which possess structure which is shown with compound, below-mentioned Formula (1) which possesses structure which is shown with below-mentioned Formula (1) and structure which is shown with below-mentioned Formula (2) and organic electroluminescent element. which contains the fluorescence substance

#### [Chemical Formula 3]

#### [Chemical Formula 4]

{In Formula (1),  $R_1$  and  $R_2$  display respective hydrogen atom, aromatic hydrocarbon group or aliphatic hydrocarbon group,  $m$  is 1 - 100. In Formula (2),  $R_3$  and  $R_4$ , you display



て、 $R_3$  および  $R_4$  は、それぞれ水素原子、芳香族炭化水素基または脂肪族炭化水素基を表し、 $R_3$  と  $R_4$  とは互いに結合して環を形成してもよく、 $n$  は 1~100 である。ただし、いずれの化合物においても、 $m+n$  は 2 以上であり、末端基は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基またはアミノ基である。]

【請求項 3】

上記発光帯と上記陰極との間に、電子注入輸送帯を有する請求項 1 または 2 の有機 EL 素子。

【請求項 4】

上記発光帯が上記蛍光性物質を 2 種類以上含有する請求項 1~3 のいずれかの有機 EL 素子。

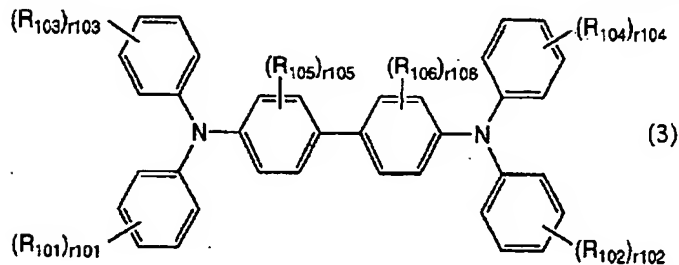
【請求項 5】

上記発光帯が、発光波長の異なる 2 層以上から構成されるか、発光波長の異なる領域を有する請求項 1~4 のいずれかの有機 EL 素子。

【請求項 6】

上記発光帯が、上記陽極側に上記式(I)で表される骨格を有する化合物を含有し、上記陰極側に下記式(3)で表されるテトラアリールベンジン誘導体を含有する請求項 1、3、4 または 5 のいずれかの有機 EL 素子。

【化 5】



【式(3)において、 $R_{101}$ 、 $R_{102}$ 、 $R_{103}$  および  $R_{104}$  は、それぞれアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリーロキシ基またはハロゲン原子を表し、 $R_{101}$ 、 $R_{102}$ 、 $R_{103}$  および  $R_{104}$  のうちの少なくとも 1 個はアリール基であり、 $r_{101}$ 、 $r_{102}$ 、 $r_{103}$  および  $r_{104}$  は、それぞれ 0 または 1~5 の整数で

respective hydrogen atom, aromatic hydrocarbon group or aliphatic hydrocarbon group, connect with  $R_3$  and  $R_4$  are possible to form ring mutually and,  $n$  is 1 - 100. However, regarding whichever compound, as for  $m+n$  with 2 or more, as for end group it is a hydrogen atom, halogen atom, alkyl group, alkoxy group, aryl group, aryloxy group or a amino group. }

[Claim 3]

Between above-mentioned light emitting band and above-mentioned cathode, organic electroluminescent element, of Claim 1 or 2 which possesses electron implantation transport band

[Claim 4]

organic electroluminescent element, of any of Claim 1~3 where above-mentioned light emitting band 2 kinds or more contains above-mentioned fluorescence substance

[Claim 5]

Above-mentioned light emitting band, is formed from 2 layers or more where light emitting wave length differs, or organic electroluminescent element, of any of Claim 1~4 which possesses domain where light emitting wave length differs

[Claim 6]

organic electroluminescent element, of any of Claim 1, 3, 4 or 5 which contains tetra aryl benzidine derivative where the above-mentioned light emitting band, contains compound which possesses the skeleton which in above-mentioned anode side is displayed with above Formula (1) in above-mentioned cathode side is displayed with below-mentioned Formula (3)

[Chemical Formula 5]

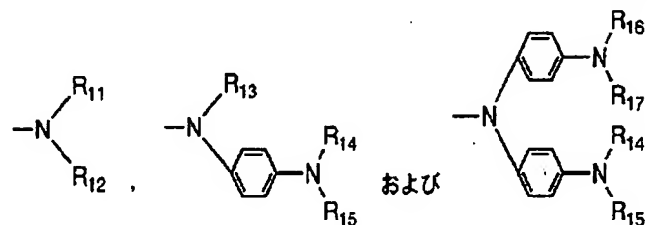
[In Formula (3),  $R_{101}$ ,  $R_{102}$ ,  $R_{103}$  and  $R_{104}$  display respective aryl group, alkyl group, alkoxy group, aryloxy group or halogen atom, as for at least one inside  $R_{101}$ ,  $R_{102}$ ,  $R_{103}$  and  $R_{104}$  with the aryl group, as for  $r_{101}$ ,  $r_{102}$ ,  $r_{103}$  and  $r_{104}$ , respectively with integer of 0 or 1~5, as for sum total of  $r_{101}$ ,  $r_{102}$ ,  $r_{103}$  and  $r_{104}$ , with integer of 1 or more, aryl group of at

あり、 $r_{101}$ 、 $r_{102}$ 、 $r_{103}$  および  $r_{104}$  の和は 1 以上の整数であり、少なくとも 1 個のアリール基が  $R_{101}$  ~  $R_{104}$  として存在し、 $R_{105}$  および  $R_{106}$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アミノ基またはハロゲン原子を表し、 $r_{105}$  および  $r_{106}$  は、それぞれ 0 または 1~4 の整数である。]

#### 【請求項 7】

上記発光帯が、上記陽極側に上記式(I)で表される骨格を有し、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  および  $R_{04}$  はそれぞれ

#### 【化 6】



である化合物を含有し、上記陰極側に上記式(I)で表される骨格を有し、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  および  $R_{04}$  はそれぞれジアリールアミノフェニレン基である化合物を含有する請求項 1、3、4 または 5 のいずれかの有機 EL 素子。

【化 6 において、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  および  $R_{17}$  は、それぞれ、置換または非置換のアリール基を表す。】

#### Specification

#### 【発明の詳細な説明】

【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、有機 EL(電界発光)素子に関する。

【0002】

#### 【従来の技術】

有機 EL 素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を陰極と陽極とで挟んだ構成を有し、薄膜に電子および正孔を注入して再結合させることにより、励起子(エキシトン)を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出(蛍光・燐光)を利用して発光する素子である。

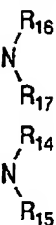
【0003】

least one exist as  $R_{101}$  ~  $R_{104}$ ,  $R_{105}$  and  $R_{106}$  display alkyl group, alkoxy group, amino group or halogen atom respectively,  $r_{105}$  and  $r_{106}$  are integer of 0 or 1~4 respectively. ]

#### [Claim 7]

Above-mentioned light emitting band, to have skeleton which in theabove-mentioned anode side is displayed with above Formula (I ), as for  $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  and  $R_{04}$  each one

#### [Chemical Formula 6]



So compound which is is contained, skeleton which in theabove-mentioned cathode side is displayed with above Formula (I ) possesses, as for  $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  and  $R_{04}$  organic electroluminescent element. of any of Claim 1、3、4 or 5 whichcontains compound which is a diaryl amino phenylene group respectively

{In Chemical Formula 6,  $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  and  $R_{17}$ , respectively, display aryl group of substituted or unsubstituted. }

#### [Description of the Invention]

【0001】

#### [Technological Field of Invention]

this invention regards organic EL (electroluminescence ) element.

【0002】

#### [Prior Art]

organic electroluminescent element thin film which includes fluorescence organic compound having constitutionwhich with cathode and anode was put between, filling electron and positive hole in thin film and forming exciton (エキシ ton ) by recombination doing, when this エキシ ton inactivation doing, it is a element which the light emitting is done making use of discharge (fluorescence \* phosphorescence ) of light.

【0003】

有機 EL 素子は、10V 以下の低電圧で 100~100,000cd/m<sup>2</sup> 程度の高輝度の面発光が可能である。

また、蛍光物質の種類を選択することにより、青色から赤色までの発光が可能である。

【0004】

一方、有機 EL 素子の問題点は、発光寿命が短く、保存耐久性、信頼性が低いことであり、この原因としては、

【0005】

(1)有機化合物の物理的变化

(結晶ドメインの成長などにより界面の不均一化が生じ、素子の電荷注入能の劣化・短絡・絶縁破壊の原因となる。特に分子量 500 以下の低分子化合物を用いると結晶粒の出現・成長が起こり、膜性が著しく低下する。また、陽極に用いられる ITO 等の界面が荒れていても、顕著な結晶粒の出現・成長が起こり、発光効率の低下や、電流のリークを起こし、発光しなくなる。また、部分的非発光部であるダークスポットの原因にもなる。)

【0006】

(2)陰極の酸化・剥離

(電子の注入を容易にするために、陰極には仕事関数の小さな金属として Na・K・Li・Mg・Ca・Al 等が用いられてきたが、これらの金属は大気中の水分や酸素と反応したり、有機層と陰極との剥離が起こり、電荷注入ができなくなる。特に、高分子化合物などを用い、スピンコートなどで成膜した場合、成膜時の残留溶媒・水分や分解物が電極の酸化反応を促進し、電極の剥離が起こり、部分的な非発光部を生じさせる。)

【0007】

(3)発光効率が低く、発熱量が多いこと(有機化合物中に電流を流すので、高い電界強度下に有機化合物を置かねばならず、発熱からは逃れられない。その熱のため、有機化合物の溶解・結晶化・熱分解などにより、素子の劣化・破壊が起こる。)

【0008】

(4)有機化合物層の光化学的变化・電気化学的变化

As for organic electroluminescent element, surface light emission of high brightness of 100 - 100,000 cd/m<sup>2</sup> extent is possible with low voltage of 10 V or less.

In addition, light emitting to red color is possible from blue by selecting types of phosphor.

[0004]

On one hand, as for problem of organic electroluminescent element, light emitting lifetime is short, by the fact that storage durability, reliability is low, as this cause,

[0005]

physical change of (1) organic compound

(becoming nonuniform of interface occurs due to growth etc of crystal domain, becomes cause of deterioration \*shunting \* insulation breakdown of electric charge fill talent of element. Especially, when low-molecular weight compound of molecular weight 500 or below is used, appearance & growth of crystal grain happen, film property decreases considerably. In addition, ITO or other interface which is used for anode having become rough, appearance & growth of marked crystal grain happen, leakage of decrease and current of light emission efficiency happens, light emitting stops doing. In addition, it becomes also cause of dark spot which is a partial nonemitting part. )

[0006]

oxidation \* exfoliation of (2) cathode

(In order to make fill of electron easy, as small metal of the work function Na \* K \* Li \* Mg \* Ca \* Al etc was used, but these metal to react with moisture or oxygen in atmosphere, exfoliation of organic layer and cathode to happen, electric charge fill becomes impossible in cathode. Especially, when film formation it does with such as spin coating making use of polymeric compound etc, residual solvent \* moisture and degradation product at time of film formation promote oxidation reaction of electrode, exfoliation of electrode happens, causes the partial nonemitting part. )

[0007]

(3) light emission efficiency is low, heat emission must be many, (Because current is let flow in organic compound, organic compound must be put under high electric field strength, it cannot escape from heat emission. Because of heat, deterioration & destruction of element happen with dissolving \* crystallization \* thermal decomposition etc of organic compound. )

[0008]

photochemical change \* electrochemical change of (4) organic compound layer

(有機物に電流を流すことで有機物が劣化し、電流トラップ・励起子トラップ等の欠陥を生じ、駆動電圧の上昇、輝度の低下等の素子劣化が起こる。)などが挙げられる。

【0009】

また、実用の発光デバイスでは色々な環境下で用いられるが、特に高温の環境下では、有機化合物の物理的変化である結晶化・有機物の移動・拡散等の有機分子の再配列を起こし、表示品位の低下や、素子の破壊を引き起こす。

【0010】

また、有機材料と無機材料の界面である陽極や陰極界面、特に陽極界面は成膜時の有機物層の膜性に大きな影響を及ぼし、状態によっては陽極上に有機物層が不均一に成膜されたり、良好な界面が形成できない等の不具合を生じる。

【0011】

このため、有機 EL 発光素子の陽極界面に、フタロシアニン、ポリフェニレンビニレン、アミン多量体等の材料を用いることが報告されている。

しかしながら、フタロシアニン(米国特許第 4720432 号明細書あるいは特開昭 63-295695 号公報)を用いると、フタロシアニン自身が微結晶性で上に載せる材料の結晶化を促進するため、初期状態では良好でも長期的にはダークスポットや発光ムラ等の原因となり、好ましくない。

【0012】

また、ポリフェニレンビニレンはスピンコート等のウェットプロセスを用いるため、水分等空気中の不純物を巻き込んだり、前駆体から変換する際の脱離基等のイオン性不純物が混入したりするため、電極の酸化が速く、著しい輝度劣化や駆動電圧の上昇の原因となる。

【0013】

また、アミン系多量体としては、 dendrimer 材料(特開平 4-308688 号公報)やテトラアミン材料(米国特許第 439627 号明細書)やトリアミン材料(特開平 8-193191 号公報)等が報告されているが、十分な耐熱性、特に高温保存状態において陽極上での膜の均一性・安定性は得られていない。

You can list (organic matter deteriorates by fact that current is let flow to the organic matter, current trap \* exciton trap or other defect is caused, decrease or other element degradation of rise and brightness of drive voltage happens. ) etc.

[0009]

In addition, in light emitting device of utility it is used under the various environment, but under environment of especially high temperature, rearrangement of the portable \* scattering or other organic molecule of crystallization \* organic matter which is a physical change of organic compound happens, causes decrease of display quality and destruction of element.

[0010]

In addition, anode and cathode interface, especially anode interface which are a interface of organic material and inorganic material exert influence which is large to film property of organic layer at time of film formation, or other disadvantage where with state on anode organic layer film formation does not make nonuniform, cannot form satisfactory interface is caused.

[0011]

Because of this, phthalocyanine, polyphenylene vinylene, amine oligomer or other material is used for anode interface of organic EL luminescent element, it is reported.

But, when phthalocyanine (U.S. Patent 4720432 specification or Japan Unexamined Patent Publication Showa 63-295695 disclosure) is used, phthalocyanine itself being microcrystallinity, in order to promote crystallization of material which Hajime is made on, with initial state being satisfactory, it becomes dark spot and light emitting unevenness or other cause in long term, is not desirable.

[0012]

In addition, when polyphenylene vinylene in order to use spin coating or other wet process, involves the impurity in air, such as moisture converting from precursor because leaving group or other ionic impurity mixes, it becomes cause of rise of luminance degradation and the drive voltage where oxidation of electrode is quick, is considerable.

[0013]

In addition, dendrimer material (Japan Unexamined Patent Publication Hei 4-308688 disclosure) and tetraamine material (U.S. Patent 439627 specification) and triamine material (Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-193191 disclosure) etc is reported as amine type oligomer, but uniformity \* stability of film on anode is not acquired in sufficient heat resistance, especially high temperature storage state.

【0014】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、駆動電圧が低く、高効率で、信頼性の高い有機 EL 素子を提供することである。

【0015】

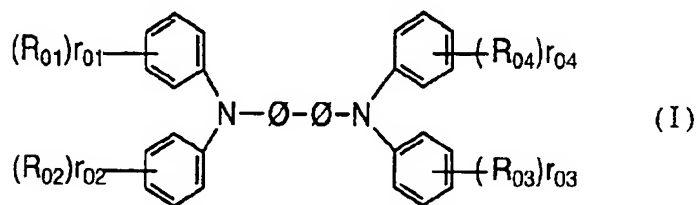
【課題を解決するための手段】

このような目的は、下記の本発明により達成される。

(1) 陽極と、この陽極上に直接設けられた発光帯と、陰極とを有し、上記発光帯が、下記式(I)で表される骨格を有する化合物と、蛍光性物質とを含有する有機 EL 素子。

【0016】

【化 7】

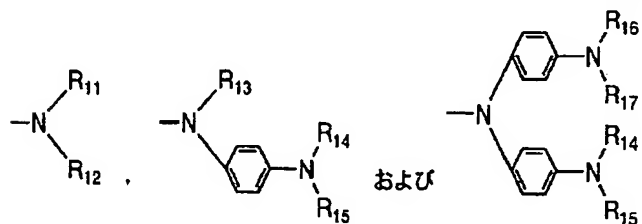


【0017】

〔式(I)において、φはフェニレン基を表し、R<sub>01</sub>、R<sub>02</sub>、R<sub>03</sub>およびR<sub>04</sub>は、それぞれジアリールアミノフェニレン基、〕

【0018】

【化 8】



【0019】

のいずれかを表し、r<sub>01</sub>、r<sub>02</sub>、r<sub>03</sub> および r<sub>04</sub> は、それぞれ 0-5 の整数であり、r<sub>01</sub>+r<sub>02</sub>+r<sub>03</sub>+r<sub>04</sub> は 1 以上である。

R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>15</sub>、R<sub>16</sub> および R<sub>17</sub> は、それ

【0014】

[Problems to be Solved by the Invention]

As for objective of this invention, drive voltage is low, with high efficiency, it isto offer organic electroluminescent element where reliability is high.

【0015】

[Means to Solve the Problems]

This kind of objective is achieved by below-mentioned this invention .

(1) anode and organic electroluminescent element。 which contains compound and fluorescence substance which possess skeleton which light emitting band and cathode which are directly provided on this anode possesses, above-mentioned light emitting band, is displayed with below-mentioned Formula ( I )

【0016】

[Chemical Formula 7]

【0017】

{In Formula ( I ), the;ph to display phenylene group, as for R<sub>01</sub>、R<sub>02</sub>、R<sub>03</sub> and the R<sub>04</sub>, respective diaryl amino phenylene group、 }

【0018】

[Chemical Formula 8]

【0019】

any is displayed, as for r<sub>01</sub>、r<sub>02</sub>、r<sub>03</sub> and r<sub>04</sub>, with integer 0 -5, as for r<sub>01</sub>+r<sub>02</sub>+r<sub>03</sub>+r<sub>04</sub> it is 1 or more respectively.

R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>15</sub>、R<sub>16</sub> and R<sub>17</sub>, respectively, display aryl

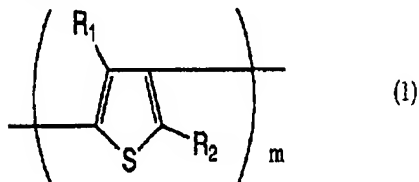
ぞれ、置換または非置換のアリール基を表す。

]

(2) 陽極と、この陽極上に直接設けられた発光帯と、陰極とを有し、上記発光帯が、下記式(1)で示される構造を有する化合物、下記式(1)で示される構造と下記式(2)で示される構造とを有する化合物および下記式(2)で示される構造を有する化合物のうちの少なくとも1種以上と、蛍光性物質とを含有する有機 EL 素子。

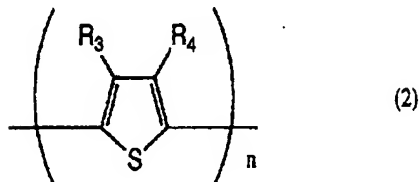
【0020】

【化 9】



【0021】

【化 10】



【0022】

[式(1)において、 $R_1$  および  $R_2$  は、それぞれ水素原子、芳香族炭化水素基または脂肪族炭化水素基を表し、 $m$  は 1~100 である。式(2)において、 $R_3$  および  $R_4$  は、それぞれ水素原子、芳香族炭化水素基または脂肪族炭化水素基を表し、 $R_3$  と  $R_4$  とは互いに結合して環を形成してもよく、 $n$  は 1~100 である。ただし、いずれの化合物においても、 $m+n$  は 2 以上であり、末端基は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリーロキシ基またはアミノ基である。]

(3) 上記発光帯と上記陰極との間に、電子注入・輸送帯を有する上記(1)または(2)の有機 EL 素子。

group of substituted or unsubstituted.

)

(2) anode and light emitting band and cathode which are directly provided on this anode to possess, above-mentioned light emitting band, at least 1 kind among compound which possess structure which is shown with compound and below-mentioned Formula (2) which possess structure which is shown with compound, below-mentioned Formula (1) which possesses structure which is shown with below-mentioned Formula (1) and the structure which is shown with below-mentioned Formula (2) and organic electroluminescent element, which contains fluorescence substance

【0020】

[Chemical Formula 9]

【0021】

[Chemical Formula 10]

【0022】

{In Formula (1),  $R_1$  and  $R_2$  display respective hydrogen atom, aromatic hydrocarbon group or aliphatic hydrocarbon group,  $m$  is 1 - 100. In Formula (2),  $R_3$  and  $R_4$ , you display respective hydrogen atom, aromatic hydrocarbon group or aliphatic hydrocarbon group, connect with  $R_3$  and  $R_4$  are possible to form ring mutually and,  $n$  is 1 - 100. However, regarding whichever compound, as for  $m+n$  with 2 or more, as for end group it is a hydrogen atom, halogen atom, alkyl group, alkoxy group, aryl group, aryloxy group or a amino group. }

Between (3) above-mentioned light emitting band and above-mentioned cathode, organic electroluminescent element, of above (1) or (2) which possesses electron implantation transport band

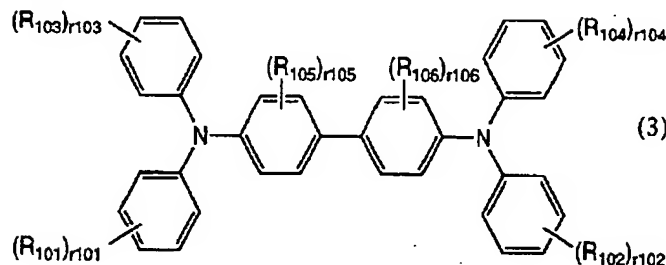
(4) 上記発光帯が上記蛍光性物質を 2 種類以上含有する上記(1)~(3)のいずれかの有機 EL 素子。

(5) 上記発光帯が、発光波長の異なる 2 層以上から構成されるか、発光波長の異なる領域を有する上記(1)~(4)のいずれかの有機 EL 素子。

(6) 上記発光帯が、上記陽極側に上記式(1)で表される骨格を有する化合物を含有し、上記陰極側に下記式(3)で表されるテトラアリールベンジジン誘導体を含有する上記(1)、(3)、(4)または(5)のいずれかの有機 EL 素子。

【0023】

【化 11】



【0024】

[式(3)において、 $R_{101}$ 、 $R_{102}$ 、 $R_{103}$  および  $R_{104}$  は、それぞれアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはハロゲン原子を表し、 $R_{101}$ 、 $R_{102}$ 、 $R_{103}$  および  $R_{104}$  のうちの少なくとも 1 個はアリール基であり、 $r_{101}$ 、 $r_{102}$ 、 $r_{103}$  および  $r_{104}$  は、それぞれ 0 または 1~5 の整数であり、 $r_{101}$ 、 $r_{102}$ 、 $r_{103}$  および  $r_{104}$  の和は 1 以上の整数であり、少なくとも 1 個のアリール基が  $R_{101}$  ~  $R_{104}$  として存在し、 $R_{105}$  および  $R_{106}$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アミノ基またはハロゲン原子を表し、 $r_{105}$  および  $r_{106}$  は、それぞれ 0 または 1~4 の整数である。]

(7) 上記発光帯が、上記陽極側に上記式(1)で表される骨格を有し、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  および  $R_{04}$  はそれぞれ

【0025】

【化 12】

implantation transport band

Description above where (4) above-mentioned light emitting band 2 kinds or more contains above-mentioned fluorescence substance (1) - organic electroluminescent element. of any of the(3)

(5) above-mentioned light emitting band, is formed from 2 layers or more where light emitting wave length differs, or description above which possesses the domain where light emitting wave length differs (1) - organic electroluminescent element. of any of(4)

Description above which contains tetra aryl benzidine derivative where (6)above-mentioned light emitting band, contains compound which possesses the skeleton which in above-mentioned anode side is displayed with above Formula (1) in above-mentioned cathode side is displayed with below-mentioned Formula (3) (1), (3), organic electroluminescent element. of any of (4) or (5)

【0023】

[Chemical Formula 11]

(3)

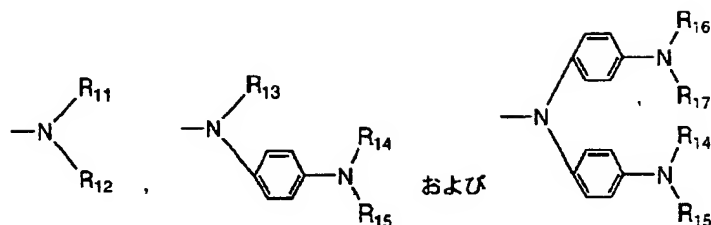
【0024】

[In Formula (3),  $R_{101}$ 、 $R_{102}$ 、 $R_{103}$  and  $R_{104}$  display respective aryl group、alkyl group、alkoxy group、aryloxy group or halogen atom, as for at least one inside  $R_{101}$ 、 $R_{102}$ 、 $R_{103}$  and  $R_{104}$  with the aryl group, as for  $r_{101}$ 、 $r_{102}$ 、 $r_{103}$  and  $r_{104}$ , respectively with integer of 0 or 1~5, as for sum total of  $r_{101}$ 、 $r_{102}$ 、 $r_{103}$  and  $r_{104}$  with integer of 1 or more, aryl group of at least one exist as  $R_{101}$  ~  $R_{104}$ ,  $R_{105}$  and  $R_{106}$  display alkyl group、alkoxy group、amino group or halogen atom respectively,  $r_{105}$  and  $r_{106}$  are integer of 0 or 1~4 respectively. ]

(7) above-mentioned light emitting band, to have skeleton which in theabove-mentioned anode side is displayed with above Formula (1), as for  $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  and  $R_{04}$  each one

【0025】

[Chemical Formula 12]



【0026】

である化合物を含有し、上記陰極側に上記式(1)で表される骨格を有し、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  および  $R_{04}$  はそれぞれジアリールアミノフェニレン基である化合物を含有する上記(1)、(3)、(4)または(5)のいずれかの有機 EL 素子。

{ 化 6 において、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  および  $R_{17}$  は、それぞれ、置換または非置換のアリール基を表す。 }

【0027】

【作用】

本発明の有機 EL 素子は、陽極と、この陽極上に直接設けられた発光帯と、陰極とを有し、発光帯が、上記式(1)で表される骨格を有する化合物(テトラアリールフェニレンジアミン誘導体)と、蛍光性物質とを含有する。

または、陽極と、この陽極上に直接設けられた発光帯と、陰極とを有し、発光帯が、上記式(1)で示される構造を有する化合物、上記式(1)で示される構造と上記式(2)で示される構造とを有する化合物および上記式(2)で示される構造を有する化合物(ポリチオフェン、チオフェン誘導体)のうちの少なくとも 1 種以上と、蛍光性物質とを含有する。

発光帯と陰極との間には、電子注入輸送帯を有していてもよい。

【0028】

ここで、発光帯とは、正孔と電子の再結合により励起子を生成させ、この励起子が失活する際の光の放出によって発光する層、つまり、発光層のことをいう。

ただし、この発光帯は、他の機能を有していてもよく、例えば、正孔注入輸送性化合物を含有し、正孔注入輸送機能を有する発光層や、電子注入輸送性化合物を含有し、電子注入輸送機能

【0026】

So compound which is contained, skeleton which in theabove-mentioned cathode side is displayed with above Formula (1 ) possesses, as for  $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  and  $R_{04}$  description above which contains compound which is a diaryl amino phenylene group respectively (1), (3), organic electroluminescent element. of any of (4) or (5)

{In Chemical Formula 6,  $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$  and  $R_{17}$ , respectively, display aryl group of substituted or unsubstituted. }

【0027】

[Working Principle]

As for organic electroluminescent element of this invention, it possesses light emitting band and the cathode which are directly provided on anode and this anode, the light emitting band, compound which possesses skeleton which is displayedwith above Formula (1 ) (tetra aryl phenylenediamine derivative ) with, contains fluorescence substance .

Or, at least 1 kind among compound (polythiophene、thiophene derivative ) which possess structure which isshown with compound and above Formula (2) which possess structure which isshown with compound、 above Formula (1) which possesses structure which possesses the light emitting band and cathode which are directly provided on anode andthis anode, light emitting band, is shown with above Formula (1) and structure which is shown with above Formula (2) and, fluorescence substance is contained.

It is possible to light emitting band and between cathode , to havepossessed electron implantation transport band.

【0028】

Here, light emitting band, forming exciton with recombination of positive hole and electron, when this exciton inactivation doing, layer which the light emitting is done, in other words, is luminescent layer saw with discharge oflight.

However, this light emitting band has been allowed to have possessed otherfunction, for example positive hole injection transporting compound contains, luminescent layer and electron implantation transporting compound which possess



を有する発光層等も含む。

発光帯は 2 層以上の発光層が積層されていてもよく、例えば、正孔注入性発光層、正孔輸送性発光層、電子注入輸送性発光層が積層されている構成としてもよい。

【0029】

電子注入輸送帯とは、陰極からの電子の注入を容易にする機能、電子を輸送する機能および正孔を妨げる機能を有する層、つまり、電子注入輸送層のことをいう。

ただし、この電子注入輸送帯は、他の機能を有していてもよい。

【0030】

このような素子構成とすることにより、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流駆動で駆動電圧が  $2\sim 6\text{V}$  と低くすることができる。

また、輝度も  $300\sim 1000\text{cd}/\text{m}^2$  で、従来のものと同等である。

【0031】

さらには、信頼性も高く、例えば、大気中、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流で  $500\sim 5000$  時間連続駆動しても駆動電圧の大きな上昇は見られない。

また、ダークスポットやリーク電流の発生も少ない。

【0032】

しかも、発光面の均一性が高く、高品位な表示が可能となる。

【0033】

【発明の実施の形態】

本発明の有機 EL 素子は、陽極と、この陽極上に直接設けられた発光層と、陰極とを有し、発光層が、下記式(I)で表される骨格を有する化合物(テトラアリアルフェニレンジアミン誘導体)と、蛍光性物質とを含有する。

必要に応じて、発光層と陰極との間に電子注入輸送層を設けてもよい。

【0034】

positive hole injection transport function contains, also luminescent layer etc which possesses electron-implanted transport function includes.

light emitting band may be laminated luminescent layer of 2 layers or more, is possible as constitution where for example positive hole injection characteristic luminescent layer, hole transporting luminescent layer, electron implantation transporting luminescent layer is laminated.

【0029】

electron implantation transport band, layer which possesses function, the function which transports electron and obstructs positive hole the function which make fill of electron from cathode easy, in other words, is electron-implanted transport layer saw.

However, this electron implantation transport band has been allowed to have possessed other function.

【0030】

2 - 6 V it can make drive voltage low with constant current drive of  $10\text{mA}/\text{cm}^2$  by making this kind of element configuration.

In addition, also brightness with  $300 - 1000\text{cd}/\text{m}^2$ , is equal to conventional ones.

【0031】

Furthermore, also reliability it is high, in for example atmosphere,  $500 - 5,000$  hour continuous drive doing with constant current of  $10\text{mA}/\text{cm}^2$ , rise where drive voltage is large is not seen.

In addition, also occurrence of dark spot and leakage current is little.

【0032】

Furthermore, uniformity of light-emitting surface becomes high, high quality indication with possible.

【0033】

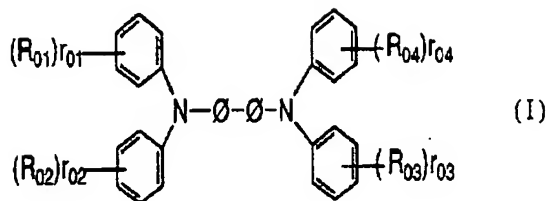
[Embodiment of the Invention]

<tetra aryl phenylenediamine derivative> this invention as for organic electroluminescent element, it possesses luminescent layer and cathode which are directly provided on anode and this anode, luminescent layer, the compound which possesses skeleton which is displayed with the below-mentioned Formula (1) (tetra aryl phenylenediamine derivative) with, contains fluorescence substance.

It is possible to provide electron-implanted transport layer between according to need, luminescent layer and cathode.

【0034】

【化 13】



[Chemical Formula 13]

【0035】

上記式(I)について説明すると、式(I)において、2つのΦはフェニレン基を表す。

Φ-Φのビフェニレン基としては、4,4'-ビフェニレン基、3,3'-ビフェニレン基、3,4'-ビフェニレン基のいずれであってもよいが、特に4,4'-ビフェニレン基が好ましい。

【0035】

When you explain concerning above Formula (I), 2:ph display phenylene group in Formula (I).

The:ph - as biphenylene group of the:ph, it is good with whichever of 4 and 4'-biphenylene group, 3, 3'-biphenylene group, 3, 4'-biphenylene group, but especially 4 and 4'-biphenylene group are desirable.

【0036】

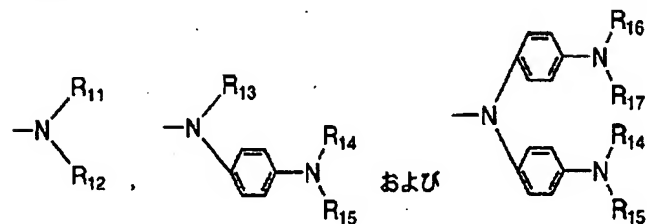
また、R01, R02, R03 および R04 は、それぞれ、ジアリールアミノフェニレン基、

【0036】

In addition, R01, R02, R03 and R04 respectively, diaryl amino phenylene group,

【0037】

【化 14】



【0037】

[Chemical Formula 14]

【0038】

のいずれかを表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

【0038】

any is displayed, these being same, may be something which differs.

化 14 において、R11, R12, R13, R14, R15, R16 および R17 は、それぞれ、無置換または置換基を有するアリール基を表す。

In Chemical Formula 14, R11, R12, R13, R14, R15, R16 and R17 respectively, display aryl group which possesses unsubstituted or substituent.

【0039】

R11, R12, R13, R14, R15, R16 および R17 で表されるアリール基としては、単環または多環のものであってよく、総炭素数 6~20 のものが好ましく、具体的には、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基および o-, m- または p- ビフェニル基等が挙げられる。

【0039】

It is possible to be monocycle or polycyclic ones as aryl group which is displayed with R11, R12, R13, R14, R15, R16 and R17, those of total number of carbon atoms 6~20 are desirable, concretely, phenyl group, naphthyl group, anthryl group, phenanthryl group, pyrenyl group, perylenyl group and can list o-, m- or p- biphenyl group etc.

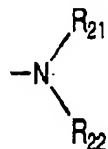
これらアリール基はさらに置換されていてもよく、このような置換基としては、炭素数 1~6 のア

As for these aryl group aryl group or alkoxy group, aryloxy group which possesses alkyl group, unsubstituted or

ルキル基、無置換または置換基を有するアリー  
ル基またはアルコキシ基、アリーロキシ基およ  
び

【0040】

【化 15】



【0041】

基等が挙げられる。

ここで、 $R_{21}$  および  $R_{22}$  は、それぞれ、無置換また  
は置換基を有するアリール基を表す。

【0042】

$R_{21}$  および  $R_{22}$  で表されるアリール基としては、単  
環または多環のものであってよく、総炭素数  
6~20 のものが好ましく、具体的には、フェニル  
基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル  
基、ピレニル基、ペリレニル基および o-,m-また  
は p-ビフェニル基等が挙げられ、特に好ましくは  
フェニル基が挙げられる。

これらアリール基はさらに置換されていてもよ  
く、このような置換基としては、炭素数 1~6 のア  
ルキル基、無置換または置換基を有するアリー  
ル基等が挙げられる。

前記アルキル基としては好ましくはメチル基が  
挙げられ、前記アリール基としては好ましくはフ  
ェニル基が挙げられる。

【0043】

また、 $R_{01}$ ,  $R_{02}$ ,  $R_{03}$  および  $R_{04}$  で表されるジアリー  
ルアミノフェニレン基は、ジアリールアミノ基が式  
(I)で表される骨格に対してメタ位(3 位)またはパ  
ラ位(4 位)に結合しているものが好ましい。

【0044】

フェニレン基は、さらに置換基を有していてもよ  
いが、ジアリールアミノ基のみを有することが好  
ましい。

【0045】

アリール基としては、単環または多環のもので  
あってよく、総炭素数 6~20 のものが好ましく、具  
体的には、フェニル基、ナフチル基、アントリル  
基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基

substituent of carbon number 1~6 furthermore as this kind of  
substituent of optionally substitutable, and

【0040】

[Chemical Formula 15]

【0041】

You can list basis etc.

Here,  $R_{21}$  and  $R_{22}$  respectively, display aryl group  
which possesses unsubstituted or substituent.

【0042】

It is possible to be monocycle or polycyclic ones as aryl group  
which is displayed with  $R_{21}$  and  $R_{22}$ , those of total number of  
carbon atoms 6~20 are desirable, concretely, phenyl group,  
naphthyl group, anthryl group, phenanthryl group,  
pyrenyl group, perylenyl group and can list o-, m- or p-  
biphenyl group, etc can list particularly preferably phenyl  
group.

As for these aryl group you can list aryl group etc which  
possesses the alkyl group, unsubstituted or substituent of  
carbon number 1~6 furthermore as this kind of substituent of  
optionally substitutable, .

You can list preferably methyl group as aforementioned alkyl  
group, you can list the preferably phenyl group as  
aforementioned aryl group.

【0043】

In addition, as for diaryl amino phenylene group which is  
displayed with  $R_{01}$ ,  $R_{02}$ ,  $R_{03}$  and  $R_{04}$ , diaryl amino group being  
Formula (I), meta position (3 -position) or those which have  
been connected to para position (4 position) are desirable  
vis-a-vis skeleton which is displayed.

【0044】

As for phenylene group, furthermore optionally substituted,  
has only diaryl amino group, it is desirable .

【0045】

As aryl group, it is possible to be monocycle or polycyclic  
ones, those of the total number of carbon atoms 6~20 are  
desirable, concretely, phenyl group, naphthyl group,  
anthryl group, phenanthryl group, pyrenyl group,

および o-,m-または p-ビフェニル基等が挙げられ、特に好ましくはフェニル基が挙げられる。

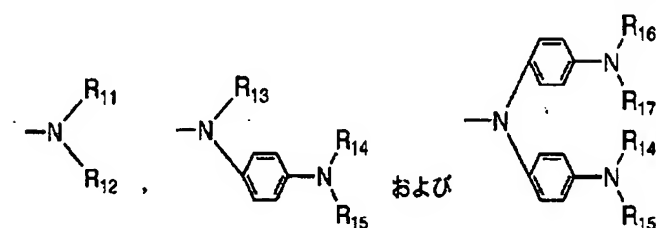
これらアリール基はさらに置換されていてもよく、このような置換基としては、炭素数 1~6 のアルキル基、無置換または置換基を有するアリール基等が挙げられる。

前記アルキル基としては好ましくはメチル基が挙げられ、前記アリール基としては好ましくはフェニル基が挙げられる。

また、アリール基の置換基としては、

[0046]

[化 16]



[0047]

も好ましい。

[0048]

化 16 の  $R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  および  $R_{17}$  は、化 14 の  $R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  および  $R_{17}$  と同義である。

[0049]

置換基を 2 以上有する場合、それらは同一でも異なってもよい。

また、置換基は、N の結合位置に対してメタ位あるいはパラ位に結合していることが好ましい。

[0050]

また、式(1)において、 $r_{01}, r_{02}, r_{03}$  および  $r_{04}$  は、それぞれ、0~5、好ましくは 0~2 の整数を表すが、特に 0 または 1 であることが好ましい。

そして、 $r_{01}+r_{02}+r_{03}+r_{04}$  は、1 以上、特に 1~4、さらには 2~4 が好ましい。

前記  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  および  $R_{04}$  は、N の結合位置に対してメタ位あるいはパラ位に結合し、 $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  および  $R_{04}$  の全てがメタ位、 $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  および  $R_{04}$  の全てがパラ位、あるいは、 $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  および  $R_{04}$  がメタ位あるいはパラ位に結合していても、これらが混在していてもよい。

perylene group and can list o-,m- or p- biphenyl group, etc can list particularly preferably phenyl group.

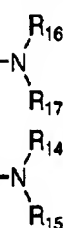
As for these aryl group you can list aryl group etc which possesses the alkyl group, unsubstituted or substituent of carbon number 1~6 furthermore as this kind of substituent of optionally substitutable, .

You can list preferably methyl group as aforementioned alkyl group, you can list the preferably phenyl group as aforementioned aryl group.

In addition, as substituent of aryl group,

[0046]

[Chemical Formula 16]



[0047]

It is desirable.

[0048]

$R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  and  $R_{17}$  of Chemical Formula 1 6  $R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  and  $R_{17}$  of the Chemical Formula 14 and are synonymous.

[0049]

When 2 or more it possesses substituent, those may be being same, differing.

In addition, it connects substituent, to meta position or para position vis-a-vis bond position of N, it is desirable .

[0050]

In addition,  $r_{01}, r_{02}, r_{03}$  and  $r_{04}$ , respectively, 0 - 5, display the integer of preferably 0~2, in Formula (1 ), but they are especially 0 or 1, it is desirable .

And, as for  $r_{01}+r_{02}+r_{03}+r_{04}$ , 1 or more, especially 1 - 4, furthermore 2 - 4 is desirable.

all of  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  and  $R_{04}$  all of meta position,  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  and the  $R_{04}$  para position, or  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  and  $R_{04}$  also these to connect the aforementioned  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  and  $R_{04}$ , to meta position or para position having connected to meta position or para position it has been allowed to have existed together vis-a-vis bond position of N.

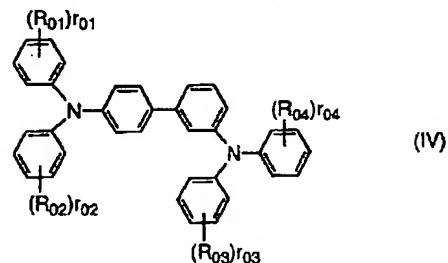
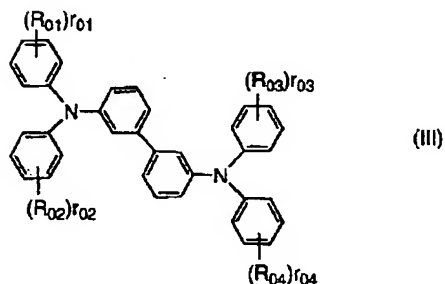
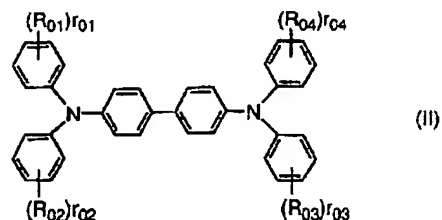
$r_{01}, r_{02}, r_{03}$  または  $r_{04}$  が 2 以上である場合、 $R_{01}$  同士、 $R_{02}$  同士、 $R_{03}$  同士または  $R_{04}$  同士は同一でも異なってもよい。

【0051】

このような化合物の好ましい具体例を下記の式 (II)~(IV) に示す。

【0052】

【化 17】



【0053】

また、前記  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  および  $R_{04}$  の好ましい具体例を以下の表 1~表 43 に示す。

なお、上記式 (II)~(IV) を一般式として表す。

【0054】

【表 1】

When  $r_{01}, r_{02}, r_{03}$  or  $r_{04}$  is 2 or more,  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  or  $R_{04}$  being same, differing, it is possible to be.

[0051]

embodiment where this kind of compound is desirable below-mentioned Formula (II) - is shown in (IV).

[0052]

[Chemical Formula 17]

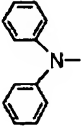
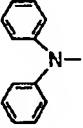
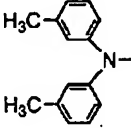
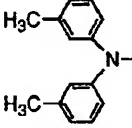
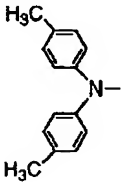
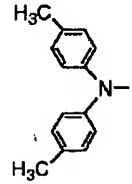
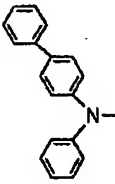
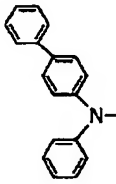
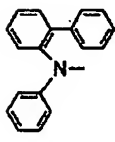
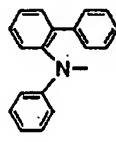
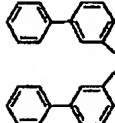

[0053]

In addition, aforementioned  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  and embodiment where  $R_{04}$  is desirable are shown in Table 1~Table 43 below.

Furthermore, above Formula (II) - you display (IV) as General Formula.

[0054]

[Table 1]

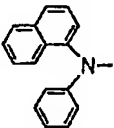
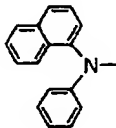
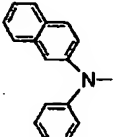
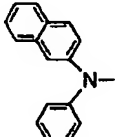
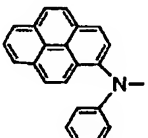
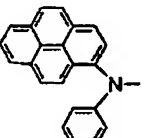
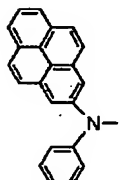
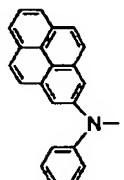
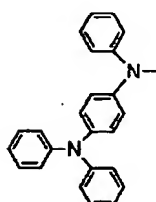
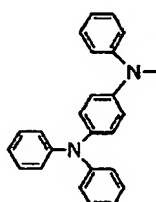
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
1	(II)		4	H-		4	H-
2	(II)		4	H-		4	H-
3	(II)		4	H-		4	H-
4	(II)		4	H-		4	H-
5	(II)		4	H-		4	H-
8	(II)		4	H-		4	H-

【0055】

【表 2】

【0055】

【Table 2】

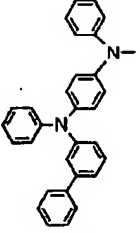
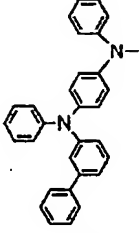
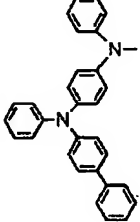
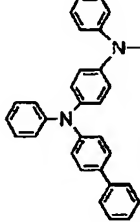
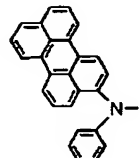
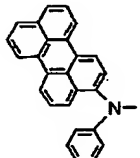
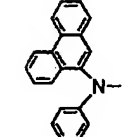
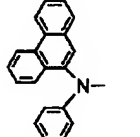
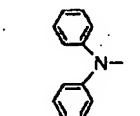
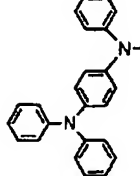
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
7	(II)		4	H-		4	H-
8	(II)		4	H-		4	H-
9	(II)		4	H-		4	H-
10	(II)		4	H-		4	H-
11	(II)		4	H-		4	H-

【0056】

【表 3】

[0056]

[Table 3]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
12	(II)		4	H-		4	H-
13	(II)		4	H-		4	H-
14	(II)		4	H-		4	H-
15	(II)		4	H-		4	H-
16	(II)		4	H-		4	H-

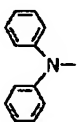
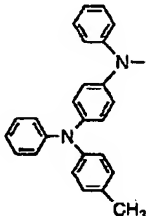
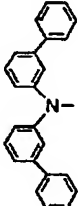
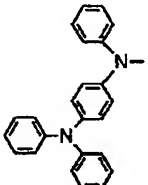
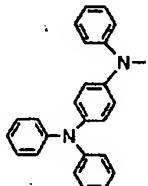
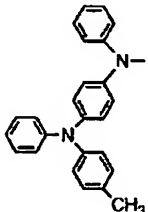
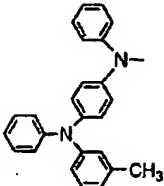
【0057】

【表 4】

【0057】

【Table 4】



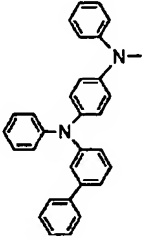
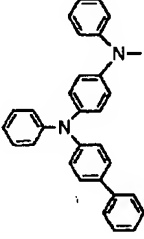
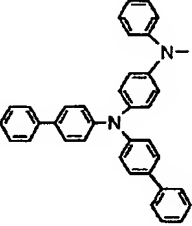
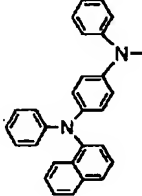
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
17	(II)		4	H-		4	H-
18	(II)		4	H-		4	H-
19	(II)	H-	4	H-		4	H-
20	(II)	H-	4	H-		4	H-
21	(II)	H-	4	H-		4	H-

【0058】

【表 5】

[0058]

[Table 5]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
22	(II)	H-	H-		4	H-
23	(II)	H-	H-		4	H-
24	(II)	H-	H-		4	H-
25	(II)	H-	H-		4	H-

【0059】

【表 6】

【0059】

【Table 6】

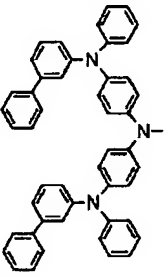
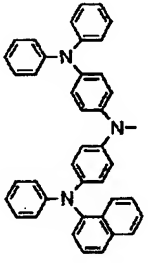
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
26	(II)	H-	H-		4	H-
27	(II)	H-	H-		4	H-
28	(II)	H-	H-		4	H-
29	(II)	H-	H-		4	H-

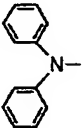
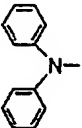
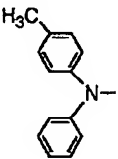
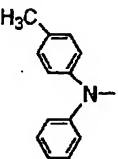
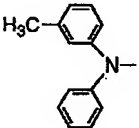
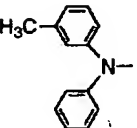
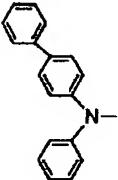
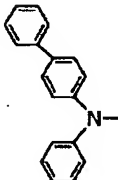
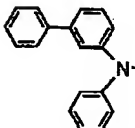
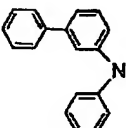
【0060】

【表 7】

【0060】

【Table 7】

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
30	(II)	H-	H-		4	H-
31	(II)	H-	H-		4	H-
【0061】 【表 8】					【0061】 【Table 8】	

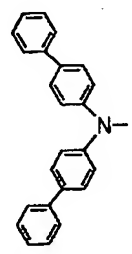
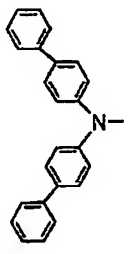
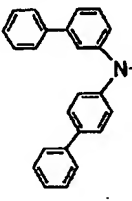
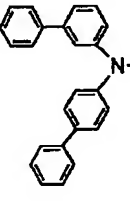
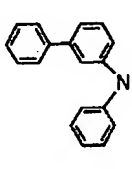
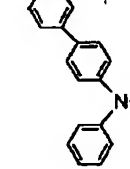
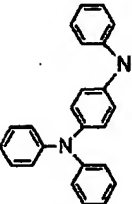
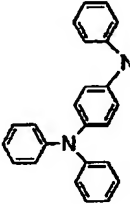
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	R <sub>04</sub>
32	(II)		4		4	H-	H-
33	(II)		4		4	H-	H-
34	(II)		4		4	H-	H-
35	(II)		4		4	H-	H-
36	(II)		4		4	H-	H-

【0062】

【表 9】

[0062]

[Table 9]

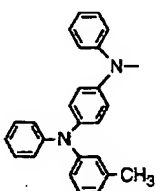
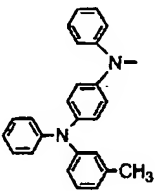
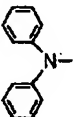
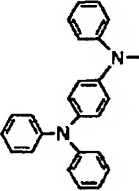
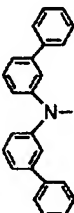
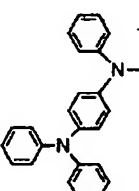
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	R <sub>04</sub>
37	(II)		4		4	H-	H-
38	(II)		4		4	H-	H-
39	(II)		4		4	H-	H-
40	(II)		4		4	H-	H-

【0063】

【表 10】

[0063]

[Table 10]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	R <sub>04</sub>
41	(II)		4		4	H-	H-
42	(II)		4		4	H-	H-
43	(II)		4		4	H-	H-

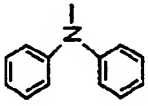
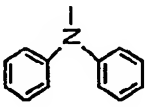
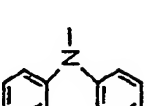
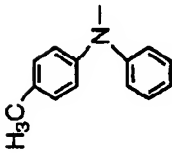
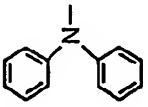
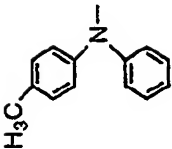
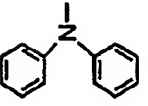
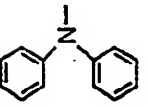
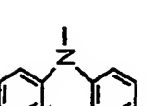
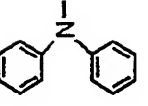
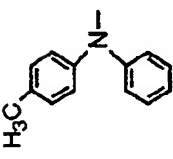
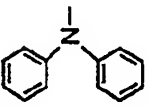
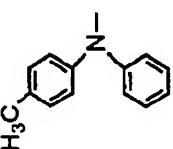
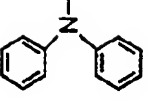
【0064】

【表 11】

[0064]

[Table 11]

表 1 1

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>	置換位
44	(II)		4		4		4	H	
45	(II)		4		4		4	H	
46	(II)		4		4		4		4
47	(II)		4		4		4		4

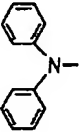
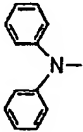
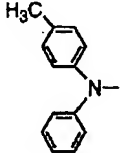
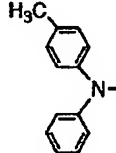
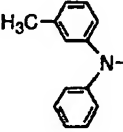
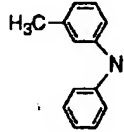
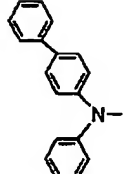
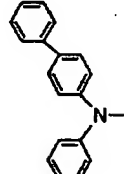
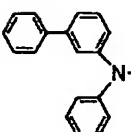
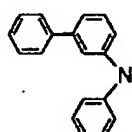
【0065】

【表 12】

[0065]

[Table 12]



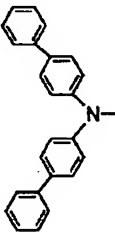
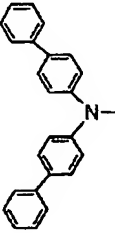
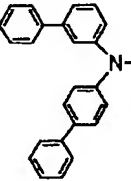
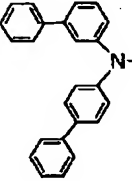
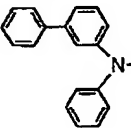
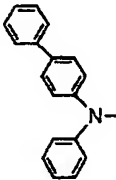
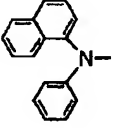
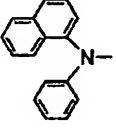
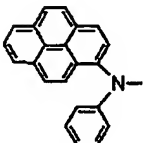
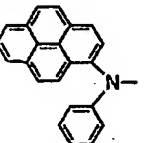
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
48	(II)		3	H-		3	H-
49	(II)		3	H-		3	H-
50	(II)		3	H-		3	H-
51	(II)		3	H-		3	H-
52	(II)		3	H-		3	H-

【0066】

【表 13】

[0066]

[Table 13]

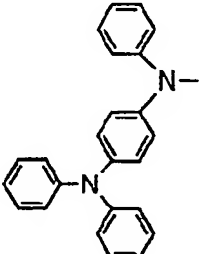
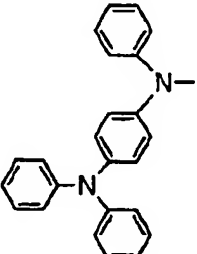
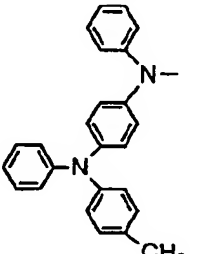
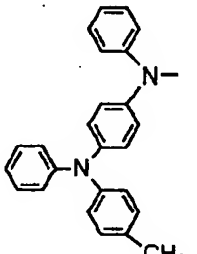
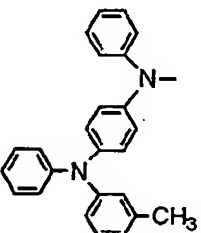
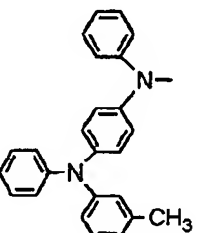
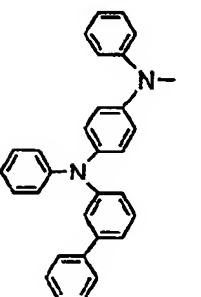
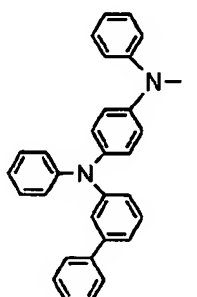
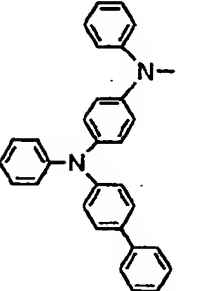
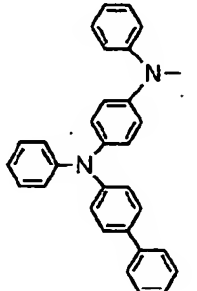
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
53	(II)		3	H-		3	H-
54	(II)		3	H-		3	H-
55	(II)		3	H-		3	H-
56	(II)		3	H-		3	H-
57	(II)		3	H-		3	H-

【0067】

【表 14】

[0067]

[Table 14]

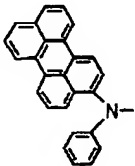
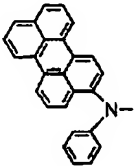
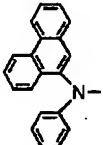
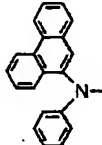
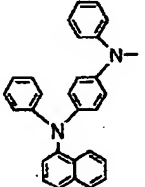
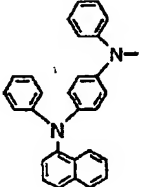
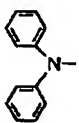
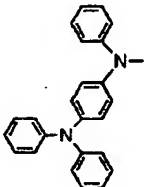
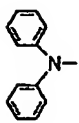
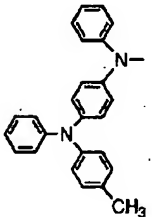
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
58	(II)		3	H-		3	H-
59	(II)		3	H-		3	H-
60	(II)		3	H-		3	H-
61	(II)		3	H-		3	H-
62	(II)		3	H-		3	H-

【0068】

[0068]

【表 15】

[Table 15]

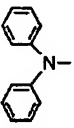
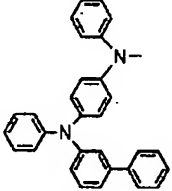
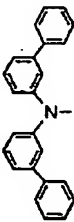
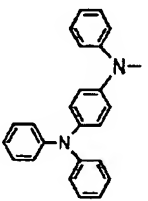
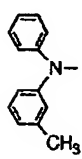
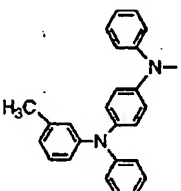
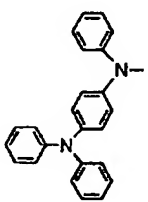
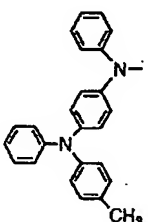
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
63	(II)		3	H-		3	H-
64	(II)		3	H-		3	H-
65	(II)		3	H-		3	H-
66	(II)		3	H-		3	H-
67	(II)		3	H-		3	H-

【0069】

【0069】

【表 16】

[Table 16]

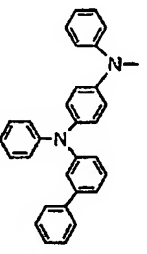
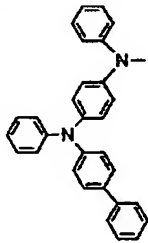
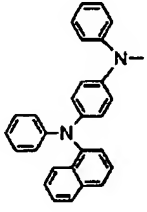
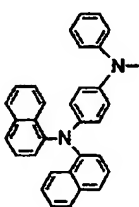
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
68	(II)		3	H-		3	H-
69	(II)		3	H-		3	H-
70	(II)		3	H-		3	H-
71	(II)	H-	3	H-		3	H-
72	(II)	H-	3	H-		3	H-

【0070】

【表 17】

【0070】

[Table 17]

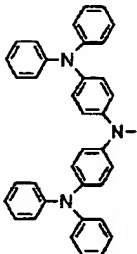
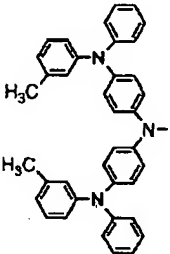
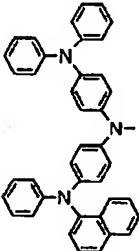
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
73	(II)	H-	H-		3	H-
74	(II)	H-	H-		3	H-
75	(II)	H-	H-		3	H-
76	(II)	H-	H-		3	H-

【0071】

【表 18】

【0071】

【Table 18】

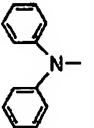
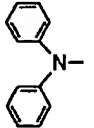
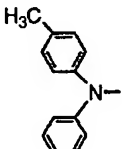
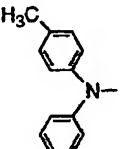
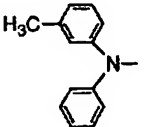
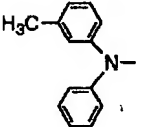
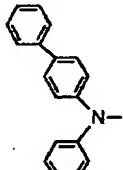
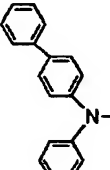
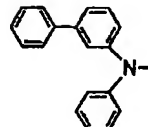
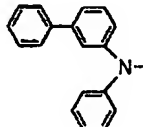
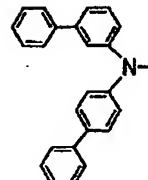
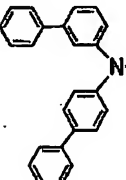
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
77	(II)	H-	H-		3	H-
78	(II)	H-	H-		3	H-
79	(II)	H-	H-		3	H-

【0072】

【表 19】

[0072]

[Table 19]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	R <sub>04</sub>
80	(II)		3		3	H-	H-
81	(II)		3		3	H-	H-
82	(II)		3		3	H-	H-
83	(II)		3		3	H-	H-
84	(II)		3		3	H-	H-
85	(II)		3		3	H-	H-

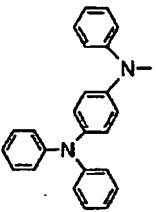
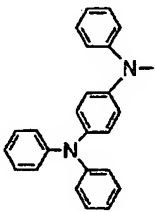
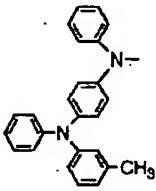
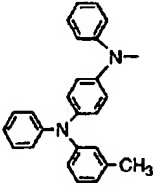
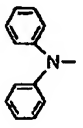
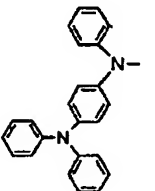
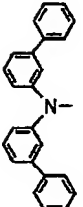
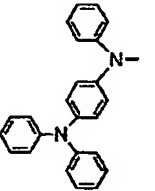
【0073】

【表 20】

[0073]

[Table 20]



化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	R <sub>04</sub>
86	(II)		3		3	H-	H-
87	(II)		3		3	H-	H-
88	(II)		3		3	H-	H-
89	(II)		3		3	H-	H-

【0074】

【表 21】

[0074]

[Table 21]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
90	(II)		3		3		3	H-
91	(II)		3		3		3	H-
92	(II)		3		3		3	H-

【0075】

【0075】

【表 22】

【Table 22】

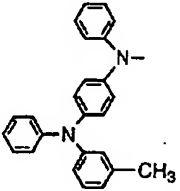
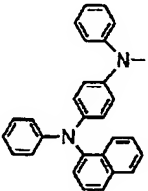
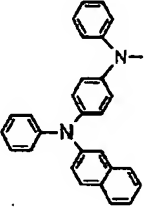
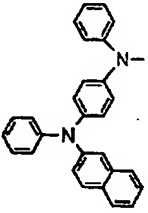
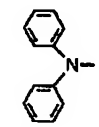
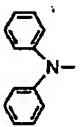
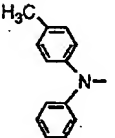
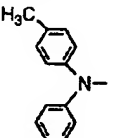
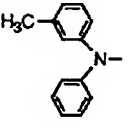
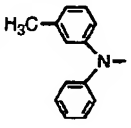
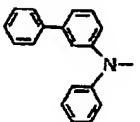
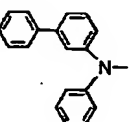
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>	置換位
93	(II)		3		3		3		3
94	(II)		3		3		3		3
95	(II)		3		3		3		3

【0076】

【0076】

【表 23】

【Table 23】

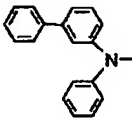
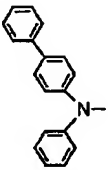
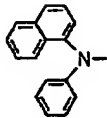
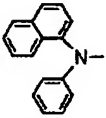
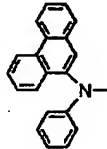
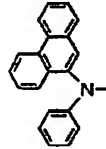
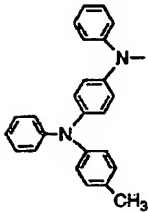
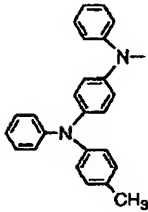
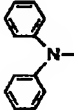
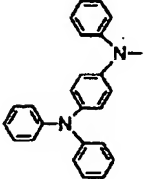
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
96	(II)		3	H-		3	H-
97	(II)		3	H-		3	H-
98	(II)		3	H-		4	H-
99	(II)		3	H-		4	H-
100	(II)		3	H-		4	H-
101	(II)		3	H-		4	H-

【0077】

【表 24】

【0077】

[Table 24]

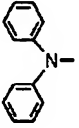
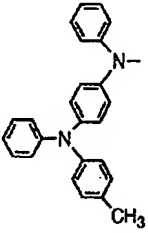
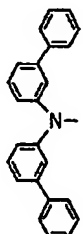
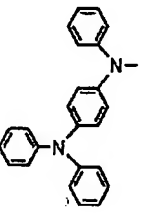
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
102	(II)		3	H-		4	H-
103	(II)		3	H-		4	H-
104	(II)		3	H-		4	H-
105	(II)		3	H-		4	H-
106	(II)		3	H-		4	H-

【0078】

【表 25】

【0078】

【Table 25】

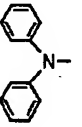
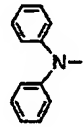
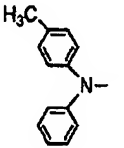
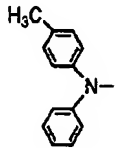
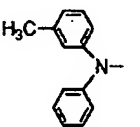
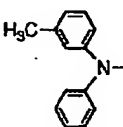
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
107	(II)		3	H-		4	H-
108	(II)		3	H-		4	H-

【0079】

[0079]

【表 26】

[Table 26]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	R <sub>04</sub>
109	(II)		3		4	H-	H-
110	(II)		3		4	H-	H-
111	(II)		3		4	H-	H-

【0080】

[0080]

【表 27】

[Table 27]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
112	(II)		3		3		4	H-
113	(II)		3		4		4	H-
114	(II)		4		3		4	H-
115	(II)		4		4		3	H-
116	(II)		4		3		4	H-
117	(II)		3		4		3	H-
118	(II)		4		3		4	H-
119	(II)		4		4		3	H-

【0081】

【表 28】

[0081]

[Table 28]

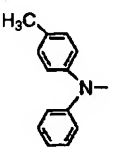
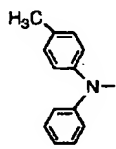
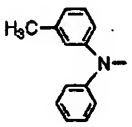
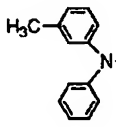
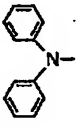
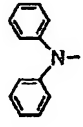
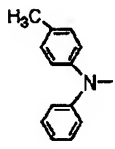
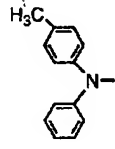
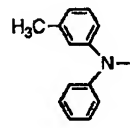
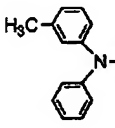
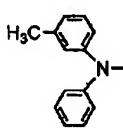
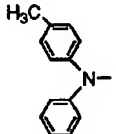
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>	置換位
120	(II)		3		3		4		4
121	(II)		3		4		3		4
122	(II)		3		4		3		4
123	(II)		4		4		4		3
124	(II)		3		4		3		4
125	(II)		4		4		3		3
126	(II)		4		3		4		3
127	(II)		4		4		4		3

【0082】

【表 29】

[0082]

[Table 29]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
128	(III)		4	H-		4	H-
129	(III)		4	H-		4	H-
130	(III)		4	H-		4	H-
131	(III)		3	H-		3	H-
132	(III)		3	H-		3	H-
133	(III)		4	H-		3	H-

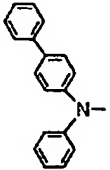
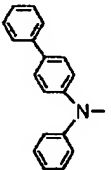
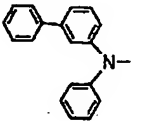
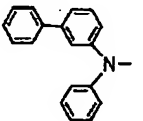
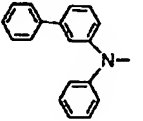
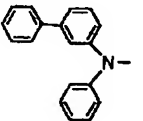
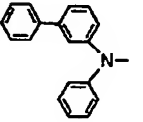
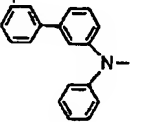
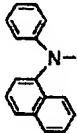
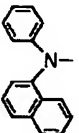
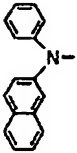
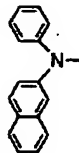
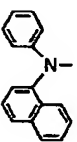
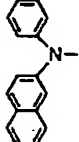
【0083】

【表 30】

[0083]

[Table 30]



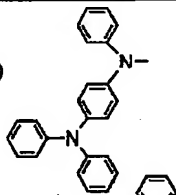
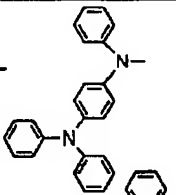
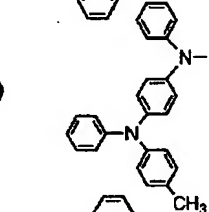
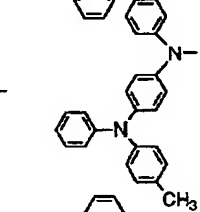
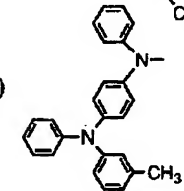
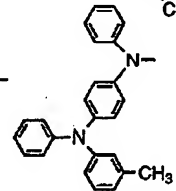
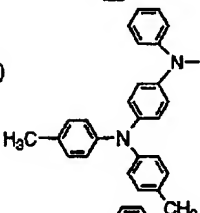
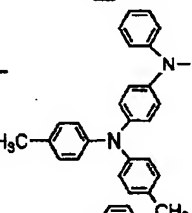
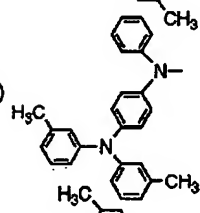
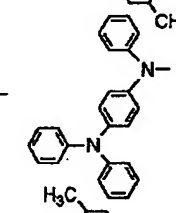
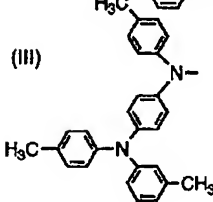
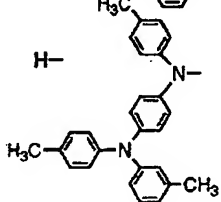
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
134	(III)		4	H-		4	H-
135	(III)		4	H-		4	H-
136	(III)		3	H-		3	H-
137	(III)		4	H-		3	H-
138	(III)		4	H-		4	H-
139	(III)		3	H-		3	H-
140	(III)		4	H-		3	H-

【0084】

【表 31】

[0084]

[Table 31]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
141	(III)		4	H-		4	H-
142	(III)		4	H-		4	H-
143	(III)		3	H-		3	H-
144	(III)		3	H-		3	H-
145	(III)		4	H-		3	H-
146	(III)		4	H-		4	H-

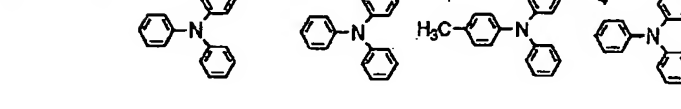
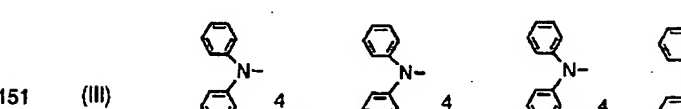
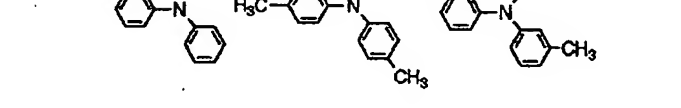
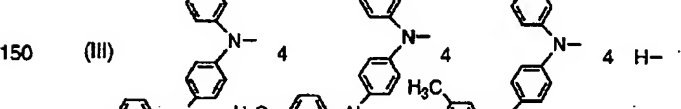
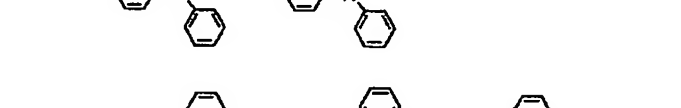
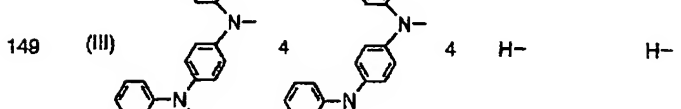
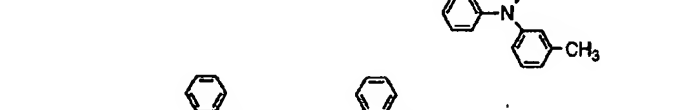
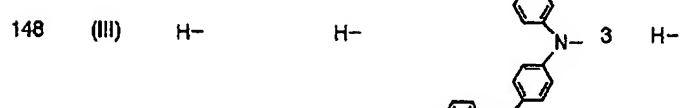
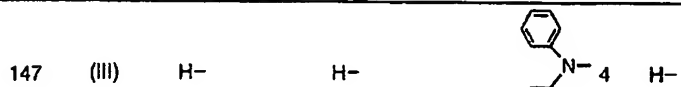
【0085】

【表 32】

【0085】

【Table 32】

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>	置換位
------------	-----	-----------------	-----	-----------------	-----	-----------------	-----	-----------------	-----

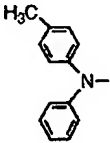
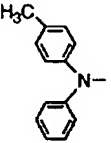
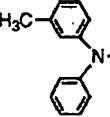
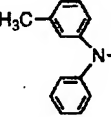
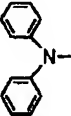
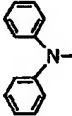
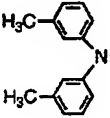
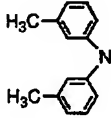
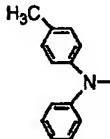
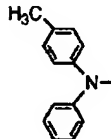
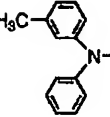
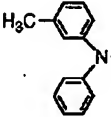
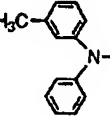
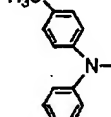


【0086】

【表 33】

[0086]

[Table 33]

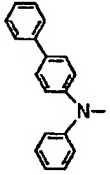
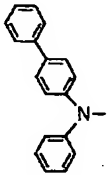
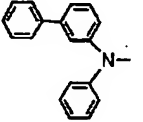
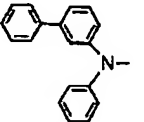
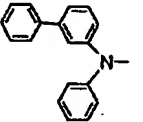
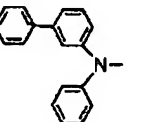
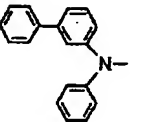
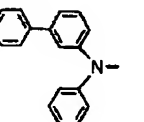
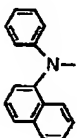
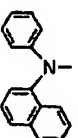
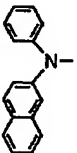
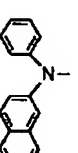
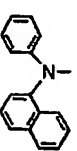
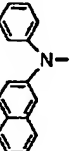
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
152	(IV)		4	H-		4	H-
153	(IV)		4	H-		4	H-
154	(IV)		4	H-		4	H-
155	(IV)		4	H-		4	H-
156	(IV)		3	H-		3	H-
157	(IV)		3	H-		3	H-
158	(IV)		4	H-		3	H-

【0087】

【表 34】

[0087]

[Table 34]

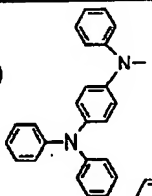
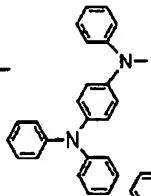
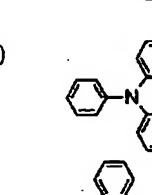
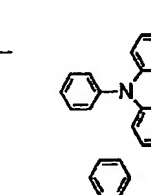
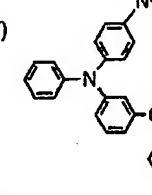
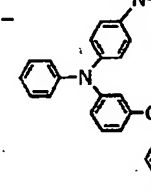
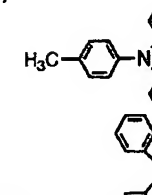
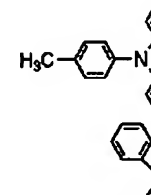
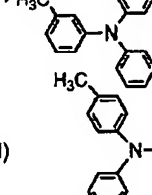
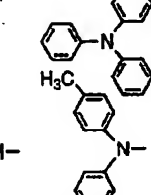
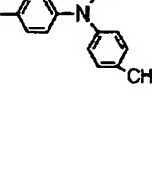
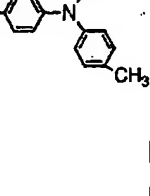
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
159	(IV)		4	H-		4	H-
160	(IV)		4	H-		4	H-
161	(IV)		3	H-		3	H-
162	(IV)		4	H-		3	H-
163	(IV)		4	H-		4	H-
164	(IV)		3	H-		3	H-
165	(IV)		4	H-		3	H-

【0088】

【表 35】

【0088】

【Table 35】

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
166	(IV)		4	H-		4	H-
167	(IV)		4	H-		4	H-
168	(IV)		3	H-		3	H-
169	(IV)		3	H-		3	H-
170	(IV)		4	H-		3	H-
171	(III)		4	H-		4	H-

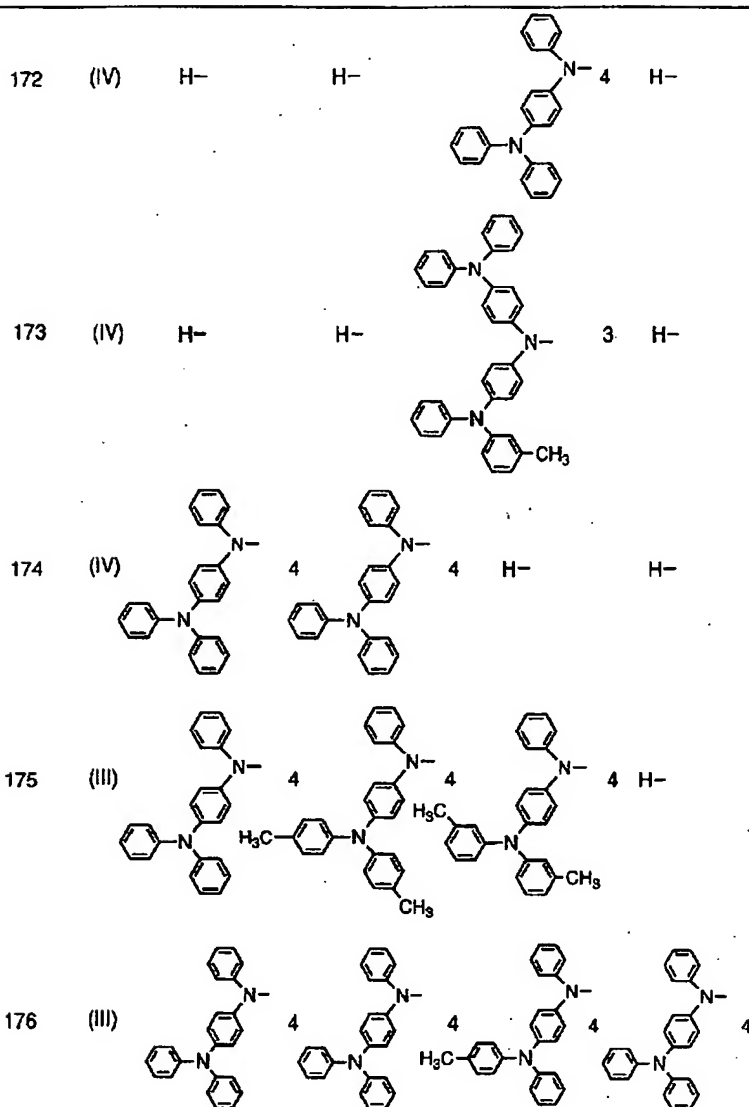
[0089]

[表 36]

[0089]

[Table 36]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>	置換位
------------	-----	-----------------	-----	-----------------	-----	-----------------	-----	-----------------	-----



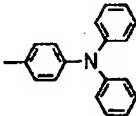
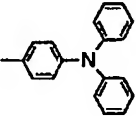
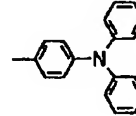
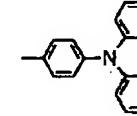
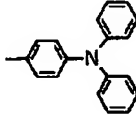
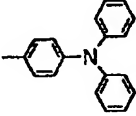
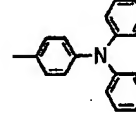
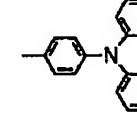
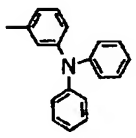
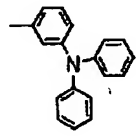
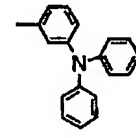
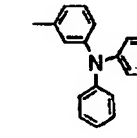
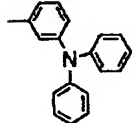
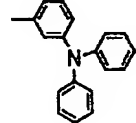
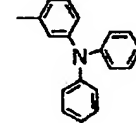
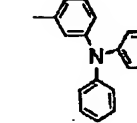
【0090】

【表 37】

【0090】

【Table 37】

表 3 7

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	置換位	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>	置換位
177	(II)		3		3		3		3
178	(II)		4		4		4		4
179	(II)		3		3		3		3
180	(II)		4		4		4		4

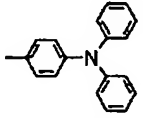
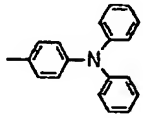
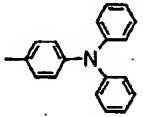
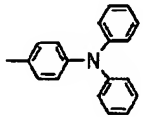
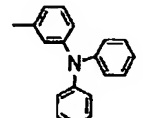
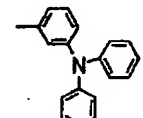
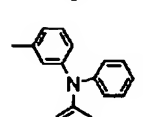
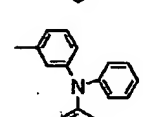
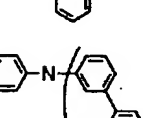
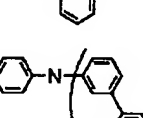
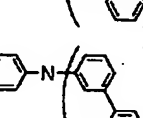
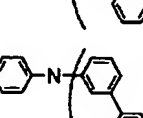
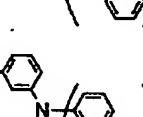
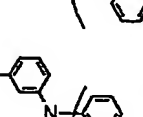
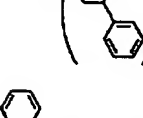
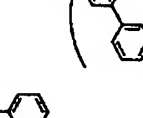
【0091】

【表 38】

[0091]

[Table 38]



化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
181	(II)		3	H-		3	H-
182	(II)		4	H-		4	H-
183	(II)		3	H-		3	H-
184	(II)		4	H-		4	H-
185	(II)		3	H-		3	H-
186	(II)		4	H-		4	H-
187	(II)		3	H-		3	H-
188	(II)		4	H-		4	H-

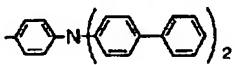
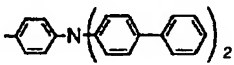
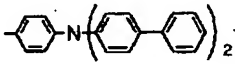
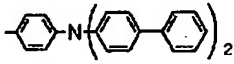
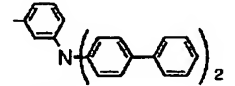
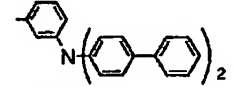
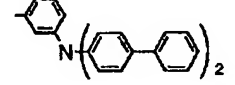
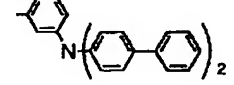
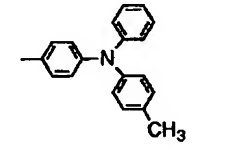
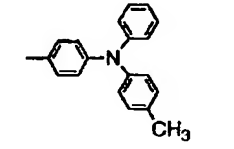
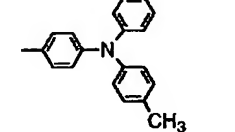
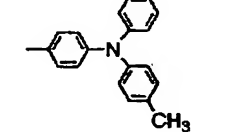
【0092】

【表 39】

【0092】

【Table 39】

表 3 9

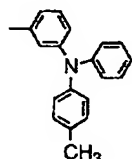
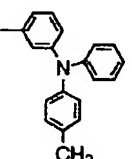
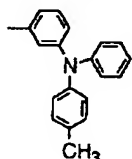
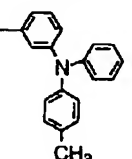
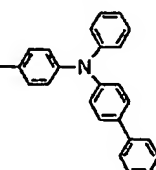
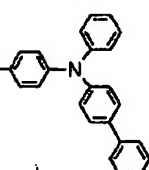
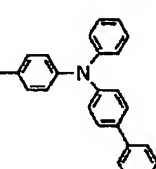
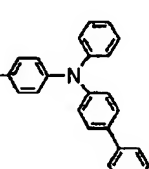
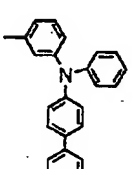
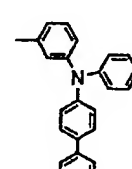
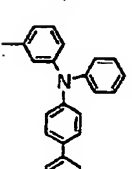
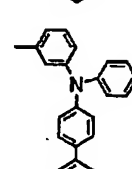
化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
189	(II)		3	H—		3	H—
190	(II)		4	H—		4	H—
191	(II)		3	H—		3	H—
192	(II)		4	H—		4	H—
193	(II)		3	H—		3	H—
194	(II)		4	H—		4	H—

【0093】

【表 40】

【0093】

【Table 40】

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
195	(II)		3	H-		3	H-
196	(II)		4	H-		4	H-
197	(II)		3	H-		3	H-
198	(II)		4	H-		4	H-
199	(II)		3	H-		3	H-
200	(II)		4	H-		4	H-

【0094】

【表 41】

[0094]

[Table 41]

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
201	(II)		3	H-		3	H-
202	(II)		4	H-		4	H-
203	(II)		3	H-		3	H-
204	(II)		4	H-		4	H-
205	(II)		3	H-		3	H-
206	(II)		4	H-		4	H-
207	(II)		3	H-		3	H-
208	(II)		4	H-		4	H-

【0095】

【表 42】

[0095]

[Table 42]

表 4 2

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
209	(II)		3	H—		3	H—
210	(II)		4	H—		4	H—
211	(II)		3	H—		3	H—
212	(II)		4	H—		4	H—
213	(II)		3	H—		3	H—
214	(II)		4	H—		4	H—

【0096】

【表 43】

[0096]

[Table 43]

表 4 3

化合物 No.	一般式	R <sub>01</sub>	置換位	R <sub>02</sub>	R <sub>03</sub>	置換位	R <sub>04</sub>
215	(II)		3	H-		3	H-
216	(II)		4	H-		4	H-
217	(II)		3	H-		3	H-
218	(II)		4	H-		4	H-

【0097】

テトラアリアルフェニレンジアミン誘導体の化合物は 1 種のみを用いても 2 種以上を併用してもよい。

【0098】

また、上記のようなテトラアリアルフェニレンジアミン誘導体と蛍光物質とを含有する発光層を 2 層以上積層することも好ましい。

この場合、陰極側に R<sub>01</sub>, R<sub>02</sub>, R<sub>03</sub> または R<sub>04</sub> がジアリアルアミノフェニレン基であるテトラアリアルフェニレンジアミン誘導体を含有する層を、陽極上にそれ以外のテトラアリアルフェニレンジアミン誘導体を含有する層を設けることが好ましい。

特に、陰極側に R<sub>01</sub>, R<sub>02</sub>, R<sub>03</sub> および R<sub>04</sub> はそれぞれジアリアルアミノフェニレン基である式(I)で表されるテトラアリアルフェニレンジアミン誘導体を含有する層を、陽極上に R<sub>01</sub>, R<sub>02</sub>, R<sub>03</sub> および R<sub>04</sub> はそれぞれ

【0099】

【化 18】

【0097】

compound of tetra aryl phenylenediamine derivative making use of only 1 kind and it may jointly use 2 kinds or more.

【0098】

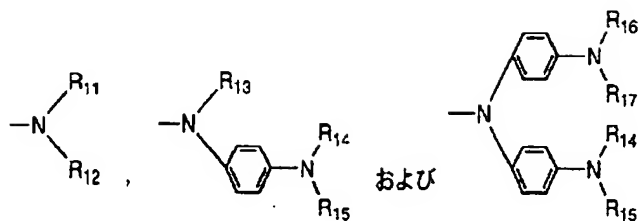
In addition, as description above also it is desirable 2 layers or more to laminate luminescent layer which contains tetra aryl phenylenediamine derivative and phosphor.

In this case, layer which contains tetra aryl phenylenediamine derivative where R<sub>01</sub>, R<sub>02</sub>, R<sub>03</sub> or R<sub>04</sub> is diaryl amino phenylene group in cathode side, layer which contains the tetra aryl phenylenediamine derivative other than that on anode is provided, it is desirable.

Especially, in cathode side as for R<sub>01</sub>, R<sub>02</sub>, R<sub>03</sub> and R<sub>04</sub> layer which contains tetra aryl phenylenediamine derivative which is displayed with Formula (I) which is a diaryl amino phenylene group respectively, on anode R<sub>01</sub>, R<sub>02</sub>, R<sub>03</sub> and R<sub>04</sub> each one

【0099】

【Chemical Formula 18】



## 【0100】

である式(I)で表されるテトラアールフェニレンジアミン誘導体を含む層を設けることが好ましい。

ここで、化 18 の  $R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  および  $R_{17}$  は、化 14 の  $R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  および  $R_{17}$  と同義である。

このような積層順とすることによって、駆動電圧が低下し、電流リークの発生やダークスポットの発生・成長を防ぐことができる。

また、この場合、各層の間に、各層を形成する各々の成分で濃度勾配を設けた傾斜構造層を形成することも好ましい。

## 【0101】

テトラアールフェニレンジアミン誘導体は、特願平 8-358416 号公報等に従って合成すればよく、1級または2級の芳香族アミンと、芳香族ヨウ化物とを銅などの触媒を用いて縮合するウルマン反応で合成することができる。

または、パナジウムのトリアルキルホスヒン錯体等を用いて縮合してもよい。

また、 $R_{01}, R_{02}$  と  $R_{03}, R_{04}$  とが非対称(ビフェニルの両側が非対称)の場合には、 $R_{01}, R_{02}$  と  $R_{03}, R_{04}$  とが、それぞれ対応するアミンを合成し、ビフェニル部を最後にカップリングしてもよい(グリニャールカップリング、 $Ni(dppp)Cl_2$  等)。

## 【0102】

以下の(A)~(C)に具体的な合成例を挙げる。

(A)では、4,4'-ジヨードビフェニルと式(VII)で表される化合物とを用い、(B)では、式(VIII)で表される化合物と式(IX)で表される化合物とを用い、銅を触媒としてカップリングして、それぞれ式(X)で表される非対称化合物を得ている。

(C)では、式(XI)で表される化合物と式(XII)で表される化合物とを  $Ni(dppp)Cl_2$  を用いてカップリ

## 【0100】

So layer which contains tetra aryl phenylenediamine derivative which with Formula (I) which is displayed is provided, it is desirable .

Here,  $R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  and  $R_{17}$  of Chemical Formula 1 8  $R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  and  $R_{17}$  of Chemical Formula 14 and are synonymous.

It makes this kind of lamination sequence, drive voltage decreases with , the generation and growth of occurrence and dark spot of current leakage is prevented, is possible .

In addition, in this case, between each layer, also it is desirable to form gradient structure layer which provides concentration gradient with each component which forms each layer.

## 【0101】

tetra aryl phenylenediamine derivative, following to Japan Patent Application Hei 8-358416 disclosure, etc if it should have synthesized, it can synthesize with aromatic amine of primary or secondary and Ullmann reaction which condenses aromatic iodide making use of copper or other catalyst.

Or, it is possible to condense making use of trialkyl phosphine complex etc of panadium.

In addition, when  $R_{01}, R_{02}$  and  $R_{03}, R_{04}$  are asymmetry (both sides of biphenyl asymmetry),  $R_{01}, R_{02}$  and  $R_{03}, R_{04}$ , synthesize amine which corresponds respectively, coupling are possible to do biphenyl section lastly (Grignard coupling,  $Ni(dppp)Cl_2$  etc).

## 【0102】

Below (A) - exemplary synthesis example is listed to (C) .

With (A), with (B), coupling doing making use of compound which is displayed with Formula (VII) and compound which is displayed with Formula (IX), with copper as catalyst, you obtain asymmetry compound which is displayed with respective Formula (X) 4, making use of the compound which is displayed with 4'-di iodo biphenyl and Formula (VII).

With (C), compound which is displayed with Formula (XI) and the compound which is displayed with Formula (XII)

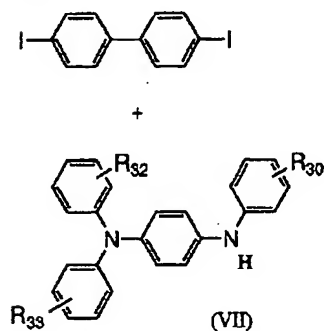
ングし、式(XIII)で表される非対称化合物を得ている。

ここで、下記(VII)~(XIII)における  $R_{30}, R_{41}$  および  $R_{45}$  は、それぞれ式(I)における  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  および  $R_{04}$  と同義であり、 $R_{32}, R_{33}, R_{42}, R_{43}, R_{46}$  および  $R_{47}$  は、それぞれ式(I)における  $R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  および  $R_{17}$  と同義である。

【0103】

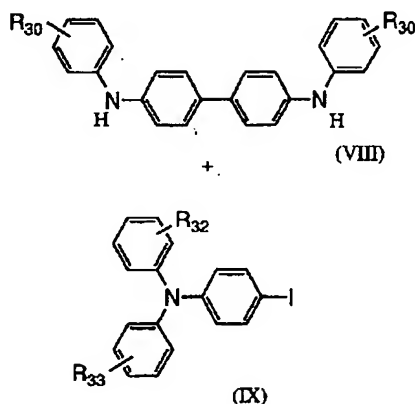
【化 19】

(A)

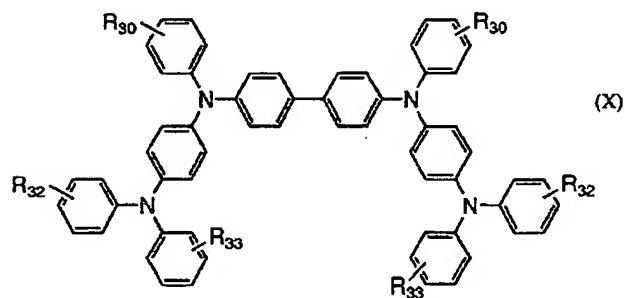


$K_2CO_3$   
Cu

(B)



$K_2CO_3$   
Cu



【0104】

【化 20】

coupling are done making use of  $Ni(dppp)Cl_2$ , asymmetry compound which is displayed with Formula (XIII) is obtained.

Here, description below (VII) - as for  $R_{30}, R_{41}$  and  $R_{45}$  in (XIII),  $R_{01}, R_{02}, R_{03}$  and  $R_{04}$  in respective Formula (I) and being synonymous, as for  $R_{32}, R_{33}, R_{42}, R_{43}, R_{46}$  and  $R_{47}$ ,  $R_{11}, R_{12}, R_{13}, R_{14}, R_{15}, R_{16}$  and  $R_{17}$  in respective Formula (I) and it is synonymous.

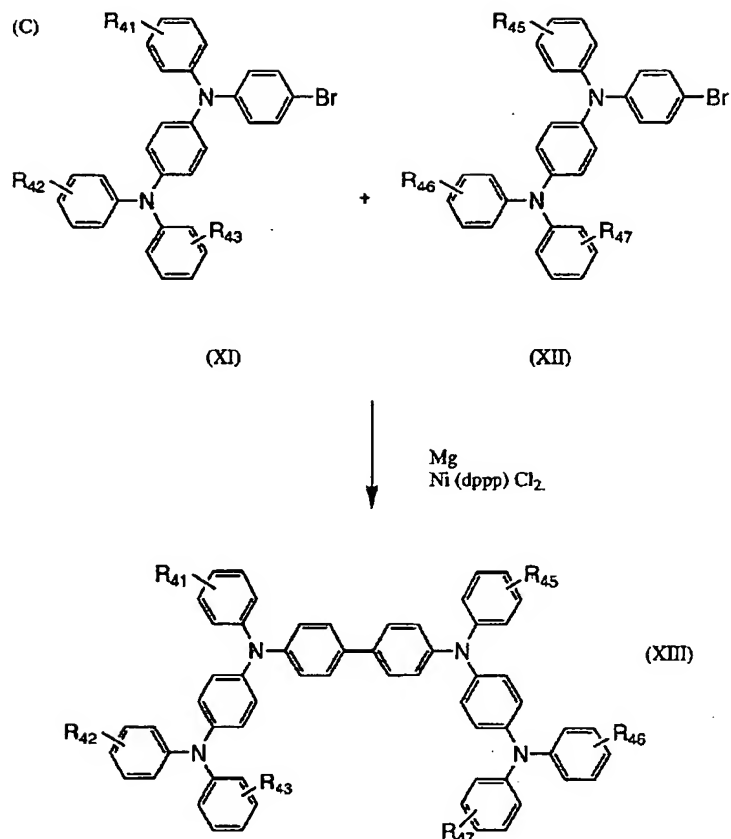
【0103】

[Chemical Formula 19]

【0104】

[Chemical Formula 20]





## [0105]

テトラアリールフェニレンジアミン誘導体は、質量分析、赤外吸収スペクトル(IR)、 $^1\text{H}$ ,  $^{13}\text{C}$  核磁気共鳴スペクトル(NMR)等によって同定することができる。

## [0106]

これらの化合物は、500~2000 程度の分子量をもち、190~300 deg C の高融点、80~200 deg C の高ガラス転移温度を示し、通常の真空蒸着等によって透明で室温以上でも安定なアモルファス状態を形成し、平滑で良好な膜が得られ、しかもそれが長期間に渡って維持される。

なお、これらの化合物の中には融点を示さず、高温においてもアモルファス状態を呈するもの、例えば、下記の HIM34、HIM38、HIM35、HIM73、HIM74、HIM78 等もある。

従って、バインダー樹脂を用いることなく、それ自体で安定で均一な薄膜を得ることができる。

## [0107]

## [0105]

tetra aryl phenylenediamine derivative, mass analysis, infrared absorption spectrum (IR),  $^1\text{H}$ ,  $^{13}\text{C}$  nuclear magnetic resonance spectrum is possible identification with such as (nmr).

## [0106]

These compound show high glass transition temperature of high melting point, 80~200 deg C of 190 - 300 deg C with molecular weight of 500 - 2000 extent, with transparent with such as conventional vacuum vapor deposition stability form amorphous state even with room temperature or higher, satisfactory film is acquired with smooth, furthermore that is maintained over long period.

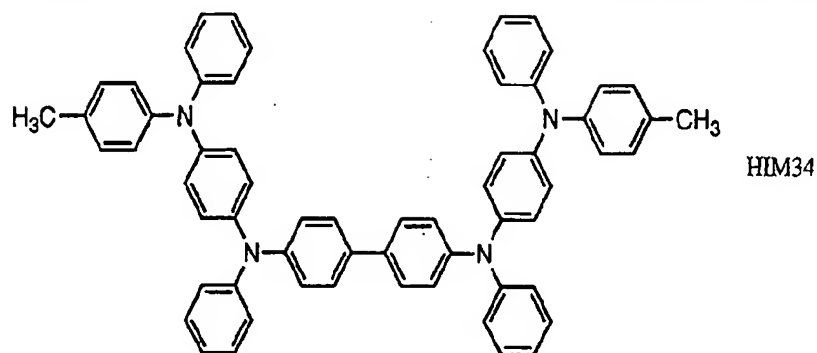
Furthermore, those which do not show melting point in these compound, display amorphous state regarding high temperature. There is also a for example below-mentioned HIM34, HIM38, HIM35, HIM73, HIM74, HIM78 etc.

Therefore, without using binder resin, with that itself uniform thin film can be acquired in stability.

## [0107]

【化 21】

[Chemical Formula 21]

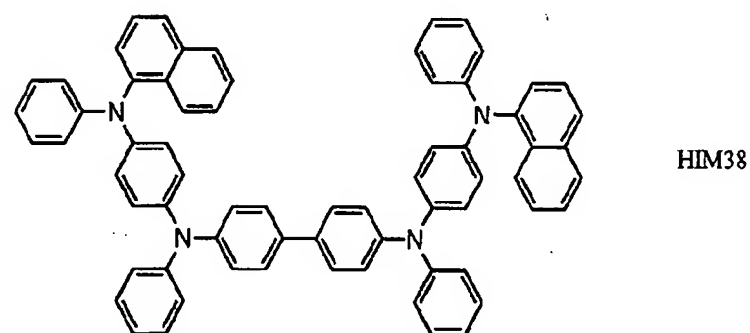


【0108】

[0108]

【化 22】

[Chemical Formula 22]

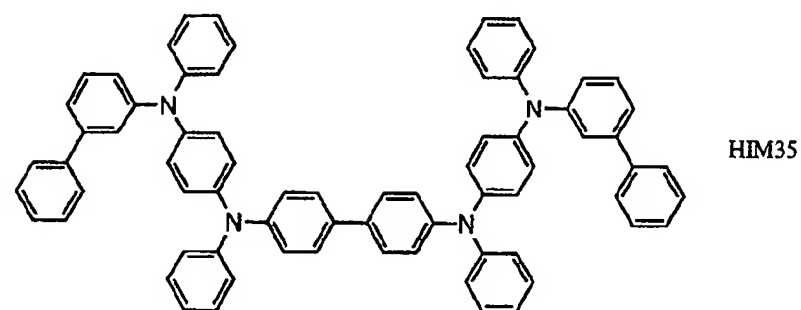


【0109】

[0109]

【化 23】

[Chemical Formula 23]

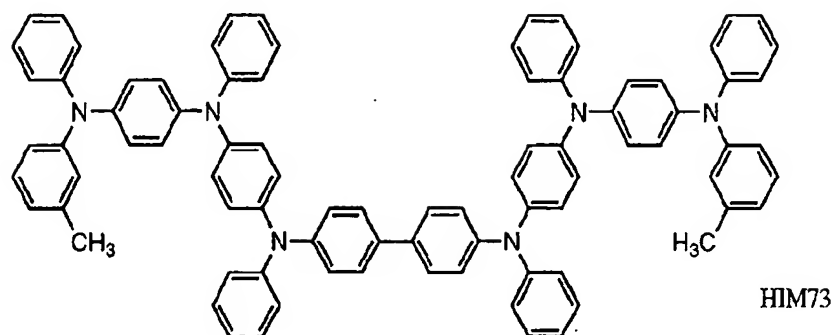


【0110】

[0110]

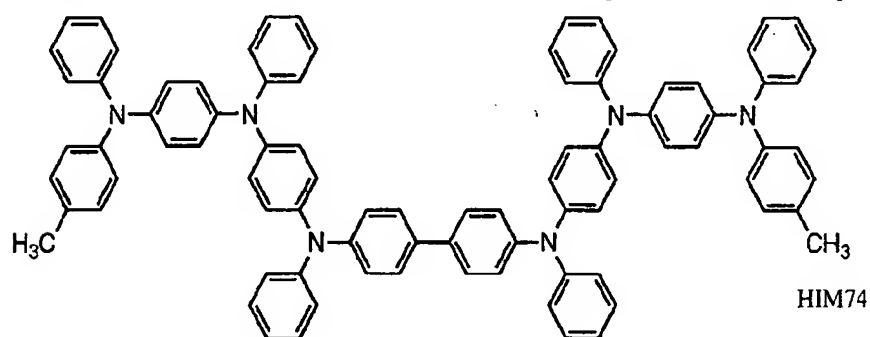
【化 24】

[Chemical Formula 24]



【0111】

【化 25】

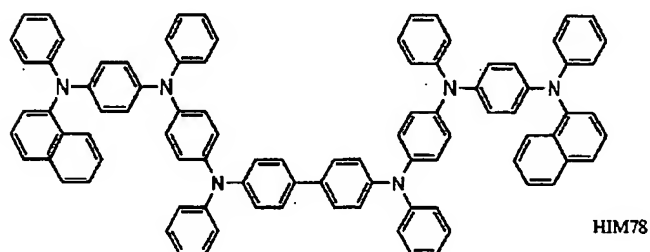


[0111]

[Chemical Formula 25]

【0112】

[0112]



【化 26】

[Chemical Formula 26]

【0113】

上記のテトラアリアルフェニレンジアミン誘導体は、発光層に用いる。

この化合物は、正孔注入性が良好であり、電極等に用いられる ITO などの無機材料上に均一に成膜されるので、通常有機 EL 素子で設けられる正孔注入層あるいは正孔注入輸送層を設けなくてよい。

[0113]

It uses above-mentioned tetra aryl phenylenediamine derivative, for luminescent layer.

As for this compound, positive hole injection characteristic being satisfactory, because on ITO or other inorganic material which is used for electrode etc film formation it makes the uniform, it is not necessary to provide positive hole-injecting layer or positive hole injection transportingbed which usually is provided with organic electroluminescent element.

上記のテトラアリールフェニレンジアミン誘導体は、フェニレンジアミン骨格とベンジジン骨格とを共に有することで耐熱性を犠牲にせず、イオン化ポテンシャルを自由にコントロールでき、組み合わせる材料に応じて正孔注入効率を最適化できる。

また、正孔移動度が大きく、発光層膜厚を数百 nm~1 μm 程度と厚膜にしても 15V 以内の実用的な駆動電圧で使用できる。

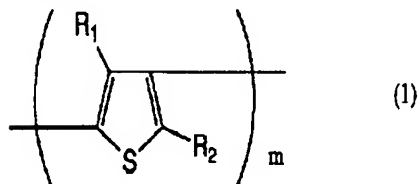
#### [0114]

本発明の有機 EL 素子は、陽極と、この陽極上に直接設けられた発光層と、陰極とを有し、発光層が、下記式(1)で示される構造を有する重合体(以下、「重合体 I」ともいう。)、下記式(1)で示される構造と下記式(2)で示される構造とを有する共重合体(以下、「共重合体 II」ともいう。)、下記式(2)で示される構造を有する重合体(以下、「重合体 III」ともいう。)および下記式(1)で示される構造および/または下記式(2)で示される構造を有するチオフェン誘導体のうちの少なくとも 1 種以上と、蛍光性物質とを含有する。

必要に応じて、発光層と陰極との間に電子注入輸送層を設けてもよい。

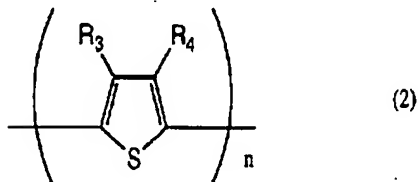
#### [0115]

##### [化 27]



#### [0116]

##### [化 28]



Freely be able to control ionization potential, to combine, optimization can do the positive hole injection efficiency according to material above-mentioned tetra aryl phenylenediamine derivative, without by the fact that it possesses phenylenediamine skeleton and benzidine skeleton together designating heat resistance as sacrifice.

In addition, degree of positive hole transport is large, can use with practical drive voltage within 15 V luminescent layer membrane thickness to several hundred nm~1 μm extent and thick film.

#### [0114]

<polythiophene, thiophene derivative>this invention as for organic electroluminescent element, polymer which possesses structure which possesses luminescent layer and cathode which are directly provided on the anode and this anode, luminescent layer, is shown with below-mentioned Formula (1) (Below, "polymer I" with you say.), copolymer which possesses structure which is shown with below-mentioned Formula (1) and structure which is shown with the below-mentioned Formula (2) (Below, "copolymer II" with you say.), polymer which possesses structure which is shown with the below-mentioned Formula (2) (Below, "polymer III" with you say.) and at least 1 kind among thiophene derivative which possess structure which is shown with structure and/or below-mentioned Formula (2) which is shown with below-mentioned Formula (1) and fluorescence substance are contained.

It is possible to provide electron-implanted transport layer between according to need, luminescent layer and cathode.

#### [0115]

##### [Chemical Formula 27]

#### [0116]

##### [Chemical Formula 28]

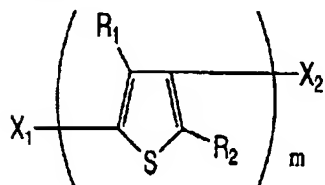
【0117】

まず、重合体 I について説明する。

重合体 I は化 27 の構造単位を有し、例えば化 29 で示されるものである。

【0118】

【化 29】



【0119】

化 27、化 29 について記すと、 $R_1$  および  $R_2$  はそれぞれ水素原子、芳香族炭化水素基または脂肪族炭化水素基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

【0120】

$R_1$  および  $R_2$  で表される芳香族炭化水素基としては、無置換であっても置換基を有するものであってもよく、炭素数 6~15 のものが好ましい。

置換基を有するときの置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アミノ基、シアノ基等が挙げられる。

芳香族炭化水素基の具体例としては、フェニル基、トリル基、メキシフェニル基、ピフェニル基、ナフチル基等が挙げられる。

【0121】

$R_1$  および  $R_2$  で表される脂肪族炭化水素基としては、アルキル基、シクロアルキル基等が挙げられ、これらのものは無置換でも置換基を有するものであってもよい。

中でも、炭素数 1~6 のものが好ましく、具体的には、メチル基、エチル基、i-プロピル基、t-ブチル基等が挙げられる。

【0122】

$R_1$ 、 $R_2$  としては、水素原子、芳香族炭化水素基が好ましく、特に水素原子が好ましい。

【0123】

用いる重合体 I の平均重合度(化 29 の  $m$ )は 4~100、さらに好ましくは 5~40、特に 5~20 が好ま

【0117】

First, you explain concerning polymer I.

It is something where polymer I has structural unit of Chemical Formula 27, is shown with for example Chemical Formula 29.

【0118】

【Chemical Formula 29】

【0119】

When you inscribe concerning Chemical Formula 27, Chemical Formula 29,  $R_1$  and  $R_2$  display respective hydrogen atom, aromatic hydrocarbon group or aliphatic hydrocarbon group, these being same, maybe something which differs.

【0120】

Also it is possible in to be something which possesses substituent as aromatic hydrocarbon group which is displayed with  $R_1$  and  $R_2$ , those of carbon number 6~15 are desirable. unsubstituted

When possessing substituent, you can list alkyl group, alkoxy group, amino group, cyano group etc as substituent.

As embodiment of aromatic hydrocarbon group, you can list phenyl group, tolyl group, methoxyphenyl group, biphenyl group, naphthyl group etc.

【0121】

You can list alkyl group, cycloalkyl group etc as aliphatic hydrocarbon group which is displayed with the  $R_1$  and  $R_2$ , any these things also in may be something which possesses substituent. unsubstituted

Those of carbon number 1~6 are desirable even among them, concretely, can list methyl group, ethyl group, i-propyl group, t-butyl group etc.

【0122】

As  $R_1$ ,  $R_2$ , hydrogen atom, aromatic hydrocarbon group is desirable, especially hydrogen atom is desirable.

【0123】

average degree of polymerization ( $m$  of Chemical Formula 29) of polymer I which it uses 4 - 100, furthermore preferably

しい。

この場合、化 27 で示される繰り返し単位が全く同一の重合体(ホモポリマー)であっても、化 27 において  $R_1$  と  $R_2$  の組合せが異なる構造単位から構成される共重合体(コポリマー)であってもよい。

共重合体としては、ランダム共重合体、交互共重合体、ブロック共重合体等のいずれであつてもよい。

【0124】

また、重合体 I の重量平均分子量は 300~10000 程度、好ましくは 500~2000 程度である。

【0125】

重合体 I の末端基(化 29 の  $X_1$  および  $X_2$ )は、水素原子、または塩素、臭素、ヨウ素等のハロゲン原子である。

$X_1$  および  $X_2$  は、それぞれ同一でも異なるものであつてもよい。

この末端基は、一般に、重合体 I の合成の際の出発原料に依存して導入される。

さらには、重合反応の最終段階で他の置換基を導入することもできる。

例えば、重合反応の最終段階でモノハロゲン化合物等を導入することで、フェニル基等のアリール基を末端基として導入することができる。

【0126】

なお、重合体 I は化 27 の構造単位のみで構成されることが好ましいが、他のモノマー成分を含有していてもよい。

その場合、他のモノマー成分は 50 モル%以下とすることが好ましい。

なお、化 27 で表されるチオフェンモノマーの総数  $m$  は、前述の通り、4~100、さらに好ましくは 5~40、特に 5~20 が好ましい。

【0127】

重合体 I の具体例を化 30 に示す。

化 30 は、化 27 ないし化 29 の  $R_1$ 、 $R_2$  の組合せで示している。

【0128】

【化 30】

5~40、especially 5 - 20 is desirable.

In this case, repeat unit which is shown with Chemical Formula 2 7 being the completely same polymer (homopolymer), it is good even with copolymer (copolymer) which is formed from structural unit where combination of  $R_1$  and  $R_2$  differs in Chemical Formula 2 7.

As copolymer, it is good random copolymer, alternating copolymer, block copolymer or other whichever.

【0124】

In addition, weight average molecular weight of polymer I is 300 - 10000 extent, preferably 500~2000 extent.

【0125】

end group ( $X_1$  and  $X_2$  of Chemical Formula 2 9) of polymer I is hydrogen atom, or chlorine, bromine, iodine or other halogen atom.

$X_1$  and  $X_2$ , being same respectively, may be something which differs.

This end group is introduced, generally, case of synthesis of the polymer I depending on starting material.

Furthermore, it is possible also to introduce other substituent with the final step of polymerization reaction.

By fact that mono halogenated compound etc is introduced with final step of the for example polymerization reaction, it can introduce phenyl group or other aryl group as end group.

【0126】

Furthermore, polymer I is formed with only structural unit of Chemical Formula 2 7 is desirable, but it is possible to contain other monomer component.

In that case, other monomer component makes 50 mole % or less, it is desirable.

Furthermore, as for total number  $m$  of thiophene monomer which is displayed with the Chemical Formula 2 7, aforementioned sort, 4 - 100, furthermore preferably 5~40, especially 5 - 20 is desirable.

【0127】

embodiment of polymer I is shown in Chemical Formula 3 0.

Chemical Formula 3 0 has shown with combination of  $R_1$ ,  $R_2$  of Chemical Formula 2 7 or the Chemical Formula 2 9.

【0128】

[Chemical Formula 30]

重合体	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	
I-1	H	H	(ホモポリマー)
I-2	H	Ph	(ホモポリマー)
I-3	Ph	H	(ホモポリマー)
I-4	Ph	Ph	(ホモポリマー)
I-5	H	CH <sub>3</sub>	(ホモポリマー)
I-6	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	(ホモポリマー)

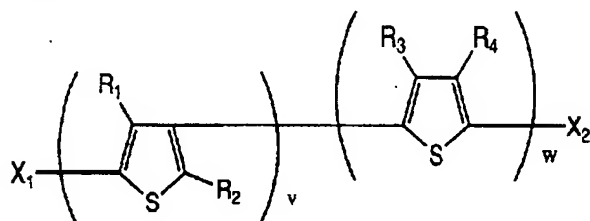
【0129】

次に、共重合体 II について説明する。

共重合体 II は化 27 の構造単位と化 28 の構造単位とを有し、例えば化 31 で示されるものである。

【0130】

【化 31】



【0131】

化 27 については重合体 I のものと同様である。

従って、化 31 中の R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> は化 27 のものと同様である。

【0132】

また、化 28 について記すと、R<sub>3</sub> および R<sub>4</sub> は、それぞれ水素原子、芳香族炭化水素基または脂肪族炭化水素基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

【0133】

R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub> で表される芳香族炭化水素基、脂肪族炭化水素基の具体例は、化 27 の R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> のところで挙げたものと同様のものを挙げることができる。

また、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub> の好ましいものも R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> と同様である。

さらに、R<sub>3</sub> と R<sub>4</sub> とは互いに結合して環を形成

【0129】

Next, you explain concerning copolymer II.

It is something where copolymer II has structural unit of Chemical Formula 2 7, and the structural unit of Chemical Formula 2 8 is shown with for example Chemical Formula 3 1.

【0130】

[Chemical Formula 31]

【0131】

It is similar to those of polymer I concerning Chemical Formula 2 7.

Therefore, R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> in Chemical Formula 3 1 is similar to those of Chemical Formula 2 7.

【0132】

In addition, when you inscribe concerning Chemical Formula 2 8, R<sub>3</sub> and the R<sub>4</sub> display respective hydrogen atom, aromatic hydrocarbon group or aliphatic hydrocarbon group, these being same, may be something which differs.

【0133】

embodiment of aromatic hydrocarbon group、aliphatic hydrocarbon group which is displayed with R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub> can list those which are similar to those which are listed at place of the R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> of Chemical Formula 2 7.

In addition, also those where R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub> is desirable are similar to R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>.

Furthermore, connecting with R<sub>3</sub> and R<sub>4</sub> mutually, it forms

し、チオフェン環に縮合していてもよい。

この場合の縮合環としては、ベンゼン環等が挙げられる。

この  $R_3$ 、 $R_4$  については、化 31 においても同様である。

【0134】

用いる共重合体 II の平均重合度(化 31 における  $v+w$ )は、重合体 I と同様に、4~100、さらに好ましくは 5~40、特に 5~20 が好ましい。

また、化 27 の構造単位と化 28 の構造単位との比率は、化 27 の構造単位/化 28 の構造単位 ( $v/w$ )が、モル比で 10/1~1/10 程度である。

【0135】

また、共重合体 II の重量平均分子量は 300~10000 程度、好ましくは 500~2000 程度である。

【0136】

共重合体 II の末端基(化 31 における  $X_1$  および  $X_2$ )は、それぞれ同一でも異なるものであってもよく、重合体 I と同様のものであり、一般に、共重合体 II の合成の際の出発原料ないしその比率に依存する。

さらには、重合反応の最終段階で他の置換基を導入することもできる。

【0137】

なお、共重合体 II は、重合体 I と同様に、化 27 の構造単位と化 28 の構造単位とで構成されることが好ましいが、他のモノマー成分を含有していてもよい。

その場合、他のモノマー成分は 50 モル%以下とすることが好ましい。

なお、化 27、化 28 で表されるチオフェンモノマーの総数  $v+w$  は、前述の通り、4~100、さらに好ましくは 5~40、特に 5~20 が好ましい。

【0138】

また、共重合体 II は、ランダム共重合体、交互共重合体、ブロック共重合体等のいずれであってもよく、化 31 の構造式はこのような構造を包含するものである。

さらに、化 27、化 28 の構造単位同士は、それぞれ同一であっても異なるものであってもよい。

ring, is possible to thiophene ring to have condensed.

As fused ring in this case, you can list benzene ring etc.

Concerning this  $R_3$ 、 $R_4$ , it is similar regarding Chemical Formula 3 1.

[0134]

As for average degree of polymerization ( $v+w$  in Chemical Formula 3 1 ) of copolymer II which it uses, in same way as the polymer I, 4 - 100, furthermore preferably 5~40、especially 5 - 20 is desirable.

In addition, as for ratio of structural unit of Chemical Formula 2 7 and structural unit of Chemical Formula 2 8, structural unit ( $v/w$ ) of structural unit/Chemical Formula 2 8 of Chemical Formula 2 7, is 10/1 - 1/10 extent with mole ratio.

[0135]

In addition, weight average molecular weight of copolymer II is 300 - 10000 extent、preferably 500~2000 extent.

[0136]

end group ( $X_1$  and  $X_2$  in Chemical Formula 3 1 ) of copolymer II, being same respectively, may be something which differs, being something which is similar to the polymer I, generally, case of synthesis of copolymer II starting material or it depends on ratio.

Furthermore, it is possible also to introduce other substituent with the final step of polymerization reaction.

[0137]

Furthermore, as for copolymer II, in same way as polymer I, with the structural unit of Chemical Formula 2 7 and structural unit of Chemical Formula 2 8 is formed is desirable, but it is possible to contain other monomer component.

In that case, other monomer component makes 50 mole % or less, it is desirable .

Furthermore, as for total number  $v+w$  of thiophene monomer which is displayed with the Chemical Formula 2 7、Chemical Formula 2 8, aforementioned sort, 4 - 100, furthermore preferably 5~40、especially 5 - 20 is desirable.

[0138]

In addition, copolymer II is good random copolymer、alternating copolymer、block copolymer or other whichever, structural formula of Chemical Formula 3 1 is something which includes this kind of structure.

Furthermore, structural unit of Chemical Formula 2 7、Chemical Formula 2 8, being same respectively, maybe something which differs



【0139】

共重合体 II の具体例を化 32 に示す。

化 32 は、化 27 の  $R_1$ 、 $R_2$  の組合せ、化 28 の  $R_3$ 、 $R_4$  の組合せ、すなわち化 31 の  $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  の組合せで示している。

【0140】

【化 32】

共重合体	$R_1$	$R_2$	$R_3$	$R_4$
II-1	H	H	H	H
II-2	H	CH <sub>3</sub>	H	H
II-3	H	Ph	H	H
II-4	H	Ph	Ph	Ph

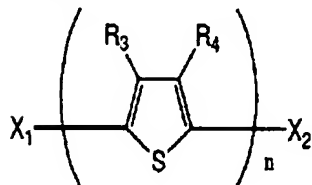
【0141】

次に、重合体 III について説明する。

重合体 III は化 28 の構造単位を有し、例えば化 33 で示されるものである。

【0142】

【化 33】



【0143】

化 33 について記すと、 $R_3$  および  $R_4$  は化 28 のものと同義であり、好ましいものも同様である。

【0144】

化 33 の  $n$  は平均重合度を表し、重合体 I、共重合体 II と同様に、4~100、さらに好ましくは 5~40、特に 5~20 が好ましい。

この場合、化 28 で示される繰り返し単位が全く

something which differs.

【0139】

embodiment of copolymer II is shown in Chemical Formula 3 2.

Chemical Formula 3 2, has shown with combination of  $R_1$ 、 $R_2$  of Chemical Formula 2 7, combination of  $R_3$ 、 $R_4$  of Chemical Formula 2 8 namely combination of  $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_4$  of Chemical Formula 3 1.

【0140】

[Chemical Formula 32]

【0141】

Next, you explain concerning polymer III.

It is something where polymer III has structural unit of Chemical Formula 2 8, is shown with for example Chemical Formula 3 3.

【0142】

[Chemical Formula 33]

【0143】

When you inscribe concerning Chemical Formula 3 3,  $R_3$  and  $R_4$  those of Chemical Formula 2 8 and being synonymous, desirable ones are similar.

【0144】

$n$  of Chemical Formula 3 3 displays average degree of polymerization, in same way as the polymer I、copolymer II, 4 - 100, furthermore preferably 5~40、especially 5 - 20 is desirable.

In this case, repeat unit which is shown with Chemical

同一の重合体(ホモポリマー)であっても、化 28 において  $R_3$  と  $R_4$  の組合せが異なる構造単位から構成される共重合体(コポリマー)であってもよい。

共重合体としては、ランダム共重合体、交互共重合体、ブロック共重合体等のいずれであってもよい。

【0145】

また、化 33 の場合、重合体 III の重量平均分子量は 300~10000 程度、好ましくは 500~2000 程度である。

【0146】

重合体 III の末端基(化 33 の  $X_1$  および  $X_2$ )は、それぞれ同一でも異なるものであってもよく、重合体 I、共重合体 II の末端基と同様のものである。

$X_1$  および  $X_2$  は重合体 III の合成の際の出発原料に依存する。

さらには、重合反応の最終段階で他の置換基を導入することもできる。

【0147】

なお、重合体 III は化 28 の構造単位のみで構成されることが好ましいが、他のモノマー成分を含有していてもよい。

その場合、他のモノマー成分は 50 モル%以下とすることが好ましい。

なお、化 28 で表されるチオフェンモノマーの総数  $n$  は、前述の通り、4~100、さらに好ましくは 5~40、特に 5~20 が好ましい。

【0148】

化 33 で表される重合体 III の具体例を化 34 に示す。

化 34 は、化 28 ないし化 33 の  $R_3$ 、 $R_4$  の組合せで示している。

【0149】

【化 34】

Formula 2 8 being the completely same polymer (homopolymer), it is good even with copolymer (copolymer) which is formed from structural unit where combination of  $R_3$  and  $R_4$  differs in Chemical Formula 2 8.

As copolymer, it is good random copolymer, alternating copolymer, block copolymer or other whichever.

[0145]

In addition, in case of Chemical Formula 3 3, weight average molecular weight of polymer III is 300 - 10000 extent, preferably 500~2000 extent.

[0146]

end group ( $X_1$  and  $X_2$  of Chemical Formula 3 3) of polymer III, being same respectively, may be something which differs, it is something which is similar to end group of polymer I, copolymer II.

$X_1$  and  $X_2$  case of synthesis of polymer III depend on starting material.

Furthermore, it is possible also to introduce other substituent with the final step of polymerization reaction.

[0147]

Furthermore, polymer III is formed with only structural unit of Chemical Formula 2 8 is desirable, but it is possible to contain other monomer component.

In that case, other monomer component makes 50 mole % or less, it is desirable.

Furthermore, as for total number  $n$  of thiophene monomer which is displayed with the Chemical Formula 2 8, aforementioned sort, 4 - 100, furthermore preferably 5~40, especially 5 - 20 is desirable.

[0148]

embodiment of polymer III which is displayed with Chemical Formula 3 3 is shown in Chemical Formula 3 4.

Chemical Formula 3 4 has shown with combination of  $R_3$ ,  $R_4$  of Chemical Formula 2 8 or the Chemical Formula 3 3.

[0149]

[Chemical Formula 34]

重合体	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	
III-1	H	H	(ホモポリマー)
III-2	H	Ph	(ホモポリマー)
III-3	Ph	Ph	(ホモポリマー)
III-4	H	4-メチルフェニル	(ホモポリマー)
III-5	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	(ホモポリマー)
III-6	H	CH <sub>3</sub>	(ホモポリマー)

## 【0150】

また、上記化 27 で示される構造を有する化合物、上記化 27 で示される構造と上記化 28 で示される構造とを有する化合物、上記化 28 で示される構造を有する化合物としては、m+n が 2~20 程度、好ましくは 4~18 程度のオリゴマー、チオフェン誘導体も好ましい。

つまり、上記化 27 で示される構造を有する化合物としては m が、上記化 27 で示される構造と上記化 28 で示される構造とを有する化合物としては m+n が、上記化 28 で示される構造を有する化合物としては n が、2~20 程度、好ましくは 4~18 程度であることが好ましい。

m は 1 分子内の化 27 で示されるチオフェンモノマーの総数、n は 1 分子内の化 28 で示されるチオフェンモノマーの総数を表し、間に他のモノマー成分を有していてもよい。

また、この場合、末端は、好ましくは炭素数 1~6 のアルキル基、好ましくは炭素数 1~6 のアルコキシ基、好ましくは炭素数 4~30 のアリーール基、好ましくは炭素数 4~30 のアリーロキシ基またはアミノ基であることが好ましい。

また、このような化合物は、他のモノマー成分、好ましくはアリーール基、特にフェニル基を含有していることも好ましい。

## 【0151】

末端のアルキル基としては、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素数 1~6 の置換もしくは無置換のアルキル基が好ましい。

特に、炭素数 1~4 の無置換のアルキル基が好

## [0150]

In addition, m+n oligomer, thiophene derivative of 2 - 20 extent, preferably 4~18 extent is desirable as the compound which possesses structure which is shown with compound, above-mentioned Chemical Formula 2 8 which possesses structure which is shown with compound, above-mentioned Chemical Formula 2 7 which possesses structure which is shown with above-mentioned Chemical Formula 2 7 and structure which is shown with above-mentioned Chemical Formula 2 8.

In other words, as compound which possesses structure which is shown with above-mentioned Chemical Formula 2 7 m+n, n, is 2 - 20 extent, preferably 4~18 extent as compound which possesses structure which is shown with the above-mentioned Chemical Formula 2 8 m, as compound which possesses the structure which is shown with above-mentioned Chemical Formula 2 7 and structure which is shown with above-mentioned Chemical Formula 2 8, it is desirable.

As for m total number, n of thiophene monomer which is shown with Chemical Formula 2 7 inside 1 molecule displays total number of thiophene monomer which is shown with the Chemical Formula 2 8 inside 1 molecule, is possible to have possessed other monomer component between.

In addition, in this case, terminal is aryloxy group or amino group of the aryl group, preferably carbon number 4~30 of alkoxy group, preferably carbon number 4~30 of alkyl group, preferably carbon number 1~6 of preferably carbon number 1~6, it is desirable .

In addition, this kind of compound containing other monomer component, preferably aryl group, especially phenyl group is desirable.

## [0151]

As alkyl group of terminal, also it is possible in to be something which possesses branch, substituted or unsubstituted alkyl group of carbon number 1~6 is desirable. straight chain

Especially, unsubstituted alkyl group of carbon number 1~4 is

ましく、具体的にはメチル基、エチル基、(n-,i-)プロピル基、(n-,i-,s-,t-)ブチル基等が挙げられる。

[0152]

アルコキシ基としては、アルキル基部分の炭素数が 1~6 のものが好ましく、具体的にはメキシ基、エトキシ基等が挙げられる。

アルコキシ基は、さらに置換されていてもよい。

[0153]

アリール基としては、単環または多環のものであってよく、総炭素数 4~30 のものが好ましく、具体的には、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ピレニル基、ペリレニル基および o-,m-または p-ビフェニル基等が挙げられ、特に好ましくはフェニル基が挙げられる。

これらアリール基はさらに置換されていてもよく、このような置換基としては、炭素数 1~6 のアルキル基、無置換または置換基を有するアリール基等が挙げられる。

[0154]

アリーロキシ基としては炭素数 4~30 のものが好ましく、フェノキシ基、4-メチルフェノキシ基、4-(t-ブチル)フェノキシ基等が挙げられる。

[0155]

アミノ基としては、無置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換基を有するものが好ましく、具体的にはジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジビフェニルアミノ基、N-フェニル-N-トリルアミノ基、N-フェニル-N-ナフチルアミノ基、N-フェニル-N-ビフェニルアミノ基、N-フェニル-N-アントリルアミノ基、N-フェニル-N-ピレニルアミノ基、ジナフチルアミノ基、ジアントリルアミノ基、ジピレニルアミノ基等が挙げられる。

[0156]

このようなオリゴマー、チオフェン誘導体としては、上記化 28 で示される構造を有する化合物が好ましく、下記のもものが好ましく挙げられる。

なお、ここでは、化 28 において  $R_3$  および  $R_4$  が水素原子であるものを例示したが、この場合も、 $R_3$  および  $R_4$  が前述の芳香族炭化水素基、脂肪族炭化水素基であってよい。

[0157]

[化 35]

desirable, can list methyl group, ethyl group, (n-, i-) propyl group, (n-, i-, s-, t-) butyl group etc concretely.

[0152]

As alkoxy group, carbon number of alkyl group part thing 1 - 6 is desirable, can list methoxy group, ethoxy group etc concretely.

As for alkoxy group, furthermore optionally substitutable.

[0153]

As aryl group, it is possible to be monocycle or polycyclic ones, those of the total number of carbon atoms 4~30 are desirable, concretely, phenyl group, naphthyl group, anthryl group, phenanthryl group, pyrenyl group, perylenyl group and can list o-, m- or p- biphenyl group, etc can list particularly preferably phenyl group.

As for these aryl group you can list aryl group etc which possesses the alkyl group, unsubstituted or substituent of carbon number 1~6 furthermore as this kind of substituent of optionally substitutable, .

[0154]

Those of carbon number 4~30 are desirable as aryloxy group, can list phenoxy group, 4- methyl phenoxy group, 4-(t-butyl) phenoxy group etc.

[0155]

As amino group, and it is possible in to be something which possesses substituent, but those which possess substituent are desirable, you can list dimethylamino group, diethyl amino base and diphenylamino group, ditolyl amino group, di biphenyl amino group, N- phenyl-N- tolyl amino group, N- phenyl-N- naphthyl amino group, N- phenyl-N- biphenyl amino group, N- phenyl-N- anthryl amino group, N- phenyl-N- pyrenyl amino group, dinaphthyl amino group, Jean trill amino group, di pyrenyl amino group etc concretely. unsubstituted

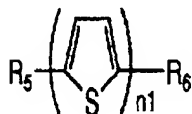
[0156]

As this kind of oligomer, thiophene derivative, compound which possesses structure which is shown with above-mentioned Chemical Formula 2 8 is desirable, can list below-mentioned ones desirably.

Furthermore, here, those where  $R_3$  and  $R_4$  are hydrogen atom in Chemical Formula 2 8 were illustrated, but in this case,  $R_3$  and the  $R_4$  may be aforementioned aromatic hydrocarbon group, aliphatic hydrocarbon group .

[0157]

[Chemical Formula 35]



【0158】

化 35 の  $n_1$  は 2~10 の整数である。

$\text{R}_5$  および  $\text{R}_6$  は、それぞれ同一でも異なるものであってもよく、炭素数 1~6 のアルキル基、炭素数 1~6 のアルコキシ基、炭素数 4~30 のアリール基または炭素数 4~30 のアリーロキシ基である。

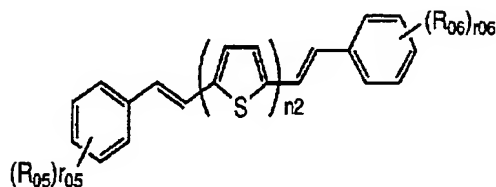
$\text{R}_5$  および  $\text{R}_6$  は、無置換でも、置換基を有していてもよい。

【0159】

また、下記のようなものも好ましい。

【0160】

【化 36】



【0161】

化 36 の  $n_2$  は 2~6 の整数である。

$\text{R}_{05}$  および  $\text{R}_{06}$  は、それぞれ、アルキル基、無置換または置換基を有するアリール基を表し、同一でも異なるものであってもよい。

$r_{05}$  および  $r_{06}$  は、それぞれ、0~5、好ましくは 0~2 の整数を表すが、特に 0 または 1 であることが好ましい。

前記  $\text{R}_{05}$  および  $\text{R}_{06}$  は、メタ位あるいはパラ位に結合していることが好ましい。

$r_{05}$  または  $r_{06}$  が 2 以上である場合、 $\text{R}_{05}$  同士、 $\text{R}_{06}$  同士は同一でも異なってもよい。

【0162】

【化 37】

【0158】

$n_1$  of Chemical Formula 3 5 is integer 2 - 10.

$\text{R}_5$  and  $\text{R}_6$ , being same respectively, may be something which differs, it is a aryl group of alkoxy group、carbon number 4~30 of alkyl group、carbon number 1~6 of carbon number 1~6 ora aryloxy group of carbon number 4~30.

As for  $\text{R}_5$  and  $\text{R}_6$ , even with unsubstituted, optionally substituted.

【0159】

In addition, as description below also thing is desirable.

【0160】

【Chemical Formula 36】

【0161】

$n_2$  of Chemical Formula 3 6 is integer 2 - 6.

$\text{R}_{05}$  and  $\text{R}_{06}$  respectively, display aryl group which possesses alkyl group、unsubstituted or substituent, it is same and it is possible to be something which differs.

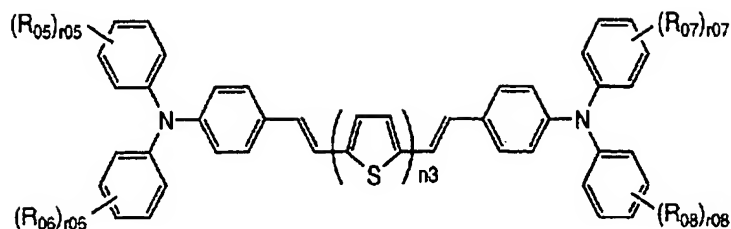
$r_{05}$  and  $r_{06}$ , respectively, 0 - 5, display integer of the preferably 0~2, but they are especially 0 or 1, it is desirable.

It connects aforementioned  $\text{R}_{05}$  and  $\text{R}_{06}$ , to meta position or para position, it is desirable.

When  $r_{05}$  or  $r_{06}$  is 2 or more,  $\text{R}_{05}$ ,  $\text{R}_{06}$  being the same, differing, it is possible to be.

【0162】

【Chemical Formula 37】



【0163】

化 37 の  $n_3$  は 2~6 の整数である。

$R_{05}$ 、 $R_{06}$ 、 $R_{07}$  および  $R_{08}$  は、それぞれ同一でも異なるものであってもよく、化 36 の  $R_{05}$  および  $R_{06}$  と同義である。

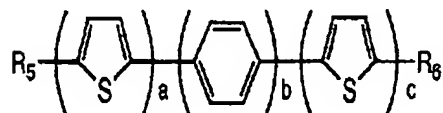
$r_{05}$ 、 $r_{06}$ 、 $r_{07}$  および  $r_{08}$  は、化 36 の  $r_{05}$  および  $r_{06}$  と同義であり、好ましいものも同様である。

【0164】

また、他のモノマー成分を含有するものとして、下記のプロック共重合体が好ましく挙げられる。

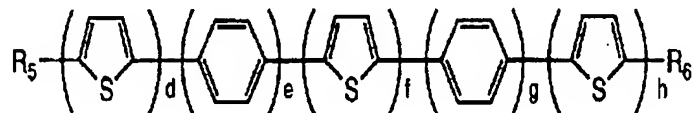
【0165】

【化 38】



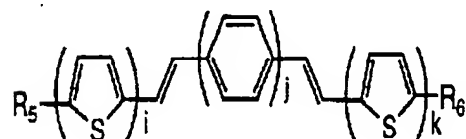
【0166】

【化 39】



【0167】

【化 40】



【0168】

化 38 の a および c はそれぞれ 1~6 の整数、b は 1~4 の整数であり、 $R_5$  および  $R_6$  は、それぞれ同一でも異なるものであってもよく、化 35 の

【0163】

$n_3$  of Chemical Formula 3 7 is integer 2 - 6.

$R_{05}$ 、 $R_{06}$ 、 $R_{07}$  and  $R_{08}$ , being same respectively, are may besomething which differs,  $R_{05}$  and  $R_{06}$  of Chemical Formula 3 6 andsynonymous.

$r_{05}$ 、 $r_{06}$ 、 $r_{07}$  and  $r_{08}$ ,  $r_{05}$  and  $r_{06}$  of Chemical Formula 3 6 andbeing synonymous, desirable ones are similar.

【0164】

In addition, you can list below-mentioned block copolymer desirably ascontains other monomer component.

【0165】

【Chemical Formula 38】

【0166】

【Chemical Formula 39】

【0167】

【Chemical Formula 40】

【0168】

As for a and c of Chemical Formula 3 8 respectively as for the integer, b of 1 - 6 with integer 1 - 4, as for  $R_5$  and  $R_6$ , beingsame respectively, it is be possible to be something

R<sub>5</sub> および R<sub>6</sub> と同義である。

【0169】

化 39 の d、f および h はそれぞれ 1~6 の整数、e および g はそれぞれ 1 または 2 であり、R<sub>5</sub> および R<sub>6</sub> は、それぞれ同一でも異なるものであってもよく、化 35 の R<sub>5</sub> および R<sub>6</sub> と同義である。

【0170】

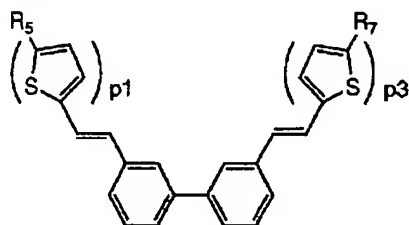
化 40 の i および k はそれぞれ 1~6 の整数、j は 1~4 の整数であり、R<sub>5</sub> および R<sub>6</sub> は、それぞれ同一でも異なるものであってもよく、化 35 の R<sub>5</sub> および R<sub>6</sub> と同義である。

【0171】

また、下記のものも好ましい。

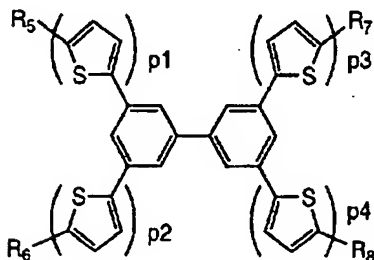
【0172】

【化 41】



【0173】

【化 42】



【0174】

【化 43】

which differs, R<sub>5</sub> and R<sub>6</sub> of Chemical Formula 3 5 and synonymous.

【0169】

As for d, f and h of Chemical Formula 3 9 respectively as for integer, e and g 1 - 6 respectively with 1 or 2 , as for R<sub>5</sub> and R<sub>6</sub> , being same respectively, it is be possible to be something which differs, R<sub>5</sub> and R<sub>6</sub> of Chemical Formula 3 5 and synonymous.

【0170】

As for i and k of Chemical Formula 4 0 respectively as for the integer, j of 1 - 6 with integer 1 - 4, as for R<sub>5</sub> and R<sub>6</sub> , being same respectively, it is be possible to be something which differs, R<sub>5</sub> and R<sub>6</sub> of Chemical Formula 3 5 and synonymous.

【0171】

In addition, also below-mentioned ones are desirable.

【0172】

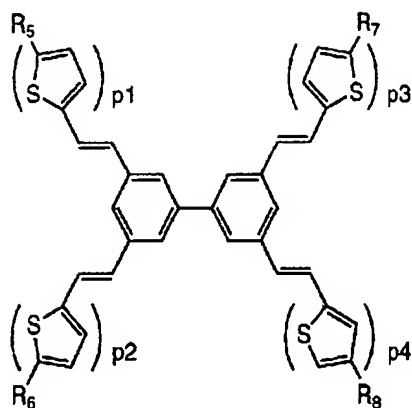
[Chemical Formula 41]

【0173】

[Chemical Formula 42]

【0174】

[Chemical Formula 43]

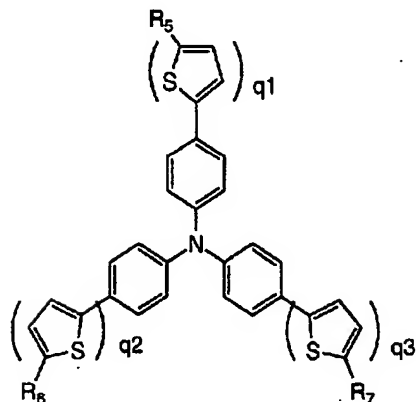


[0175]

化 41、化 42、化 43 について記すと、 $p_1$ 、 $p_2$ 、 $p_3$  および  $p_4$  はそれぞれ 1~6 の整数であり、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  および  $R_8$  は、それぞれ同一でも異なるものであってもよく、化 35 の  $R_5$  および  $R_6$  と同義である。

[0176]

[化 44]



[0177]

化 44 の  $q_1$ 、 $q_2$  および  $q_3$  はそれぞれ 2~6 の整数であり、 $R_5$ 、 $R_6$  および  $R_7$  は、それぞれ同一でも異なるものであってもよく、化 35 の  $R_5$  および  $R_6$  と同義である。

[0178]

本発明で用いる重合体 I、共重合体 II、重合体 III およびチオフェン誘導体は、米国特許 5540999 号明細書(特願平 6-170312 号対応)等に従って合成すればよく、ジハロゲン化アリール化合物を縮重合することで得られる。

[0175]

When you inscribe concerning Chemical Formula 4 1、Chemical Formula 4 2、Chemical Formula 4 3, as for  $p_1$ 、 $p_2$ 、 $p_3$  and  $p_4$  respectively with integer 1 - 6, as for  $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  and  $R_8$  , beingsame respectively, it is be possible to be something whichdiffers,  $R_5$  and  $R_6$  of Chemical Formula 3 5 and synonymous.

[0176]

[Chemical Formula 44]

[0177]

As for  $q_1$ 、 $q_2$  and  $q_3$  of Chemical Formula 4 4 respectively with integer 2- 6, as for  $R_5$ 、 $R_6$  and  $R_7$  , being same respectively, itis be possible to be something which differs,  $R_5$  and  $R_6$  of Chemical Formula 3 5 and synonymous.

[0178]

It is acquired by fact that polymer I、copolymer II、polymer III and thiophene derivative which are usedwith this invention, following to U.S. Patent 5540999 specification (Japan Patent Application Hei 6-170 31 2 number correspondence), etc if it should havesynthesized, condensation polymerization does dihalogenation and



好ましくは、(1)グリニャール反応を行い、ジクロロ(2,2'-ビピリジン)ニッケル[NiCl<sub>2</sub>(bpy)]などのNi錯体などを用いて重合する方法 [ T.Yamamoto, et al., Bull.Chem.Soc.Jpn.,56,1497(1983)] や、(2)ビス(1,5-シクロオクタジエン)ニッケル[Ni(cod)<sub>2</sub>]を用いて重合する方法 [ T.Yamamoto, et al., Polym.J.,22,187(1990)] などにより得られる。

【0179】

このような化合物の同定は、元素分析、赤外吸収スペクトル(IR)、核磁気共鳴スペクトル(NMR)等によって行うことができる。

【0180】

また、平均重合度、重量平均分子量は、光散乱法、ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)、液体クロマトグラフィー、マスペクトル等によって求めることができる。

【0181】

これらの化合物は、融点が 300 deg C 以上、または融点を持たないものであり、真空蒸着によりアモルファス状態あるいは微結晶状態の良質な膜が得られる。

【0182】

本発明の有機 EL 素子は、陽極の上に直接、少なくとも 1 層以上の発光層を有し、その上に、電子注入輸送層、陰極を有する。

なお、発光層の機能により、電子注入輸送層はなくてもよい。

本発明の有機 EL 素子の構成例を図 1 に示す。

同図に示される有機 EL 素子は、基板 1 上に、陽極 2、発光層 3、電子注入輸送層 4、陰極 5 を順次有する。

通常、有機 EL 素子は陽極と発光層との間に正孔注入層、正孔注入輸送層を設けるが、本発明では発光層に用いる上記の化合物の正孔注入輸送機能が高く、電極上に均一な薄膜を形成する能力が高いので、これらの層を設けなくてよい。

condensation polymerization does dihalogenation aryl compound.

It does preferably, (1) Grignard reaction, it is acquired by method [ T.Yamamoto, et al., Polym.J.,22,187 (1990)] etc which is polymerized method which is polymerized making use of dichloro (2 and 2'-bipyridine) nickel [Ni Cl<sub>2</sub> (bpy)] or other Ni complex etc [ T.Yamamoto, et al., Bulletin of the Chemical Society of Japan (0009 - 2673, BCSJA ), 56 and 1497 (1983)] and, making use of (2) bis (1 and 5 -cyclooctadiene) nickel [Ni (cod) <sub>2</sub> ].

【0179】

elemental analysis, infrared absorption spectrum (IR), it does identification of this kind of compound, with nuclear magnetic resonance spectrum (nmr) etc, it is possible .

【0180】

In addition, light scattering method, gel permeation chromatography (GPC), it seeks average degree of polymerization, weight average molecular weight, with liquid chromatography, mass spectrum etc, it is possible .

【0181】

As for these compound, being something where melting point does not have 300 deg C or greater, or melting point, good quality film of amorphous state or microcrystalline form is acquired by vacuum vapor deposition .

【0182】

<this invention organic electroluminescent element constitution>this invention organic electroluminescent element, directly, has luminescent layer of one layer or more at least on anode, on that, possesses electron-implanted transport layer, cathode.

Furthermore, with function of luminescent layer, it is not necessary as for electron-implanted transport layer to be.

configuration example of organic electroluminescent element of this invention is shown in Figure 1.

organic electroluminescent element which is shown in same Figure, on substrate 1, sequential has the anode 2, luminescent layer 3, electron-implanted transport layer 4, cathode 5.

Usually, organic electroluminescent element provides positive hole-injecting layer, positive hole injection transporting bed between anode and luminescent layer, it is not necessary, but with this invention positive hole injection transport function of above-mentioned compound which is used for luminescent layer to be high, because capacity which forms uniform thin film on electrode is high, to provide these layers.

なお、本発明では、前述の通り、発光層は他の機能を有するものであってもよく、例えば、正孔注入輸送性発光層、電子注入輸送性発光層としてもよい。

【0183】

発光層は、正孔(ホール)および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有するものである。

発光層は2層以上積層してもよい。

【0184】

発光層には比較的電子的にニュートラルな層を用いることが好ましい。

ニュートラルな層の構成方法は、ニュートラルな材料を単体、もしくは組み合わせてもよいし、電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物とを組み合わせる層全体としてニュートラルにしてもよい。

ただし、組み合わせる材料の電子受容性と電子供与性とが極端に強い場合はエキサイプレックス等の蛍光性の低下もしくは発光波長のシフト現象が見られ、好ましくない。

電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物とを組み合わせる混合層については後述する。

【0185】

本発明の有機 EL 素子の発光層は、上記式(1)で表される骨格を有する化合物(テトラアールフェニレンジアミン誘導体)、上記式(1)で示される構造を有する化合物、上記式(1)で示される構造と上記式(2)で示される構造とを有する化合物および上記式(2)で示される構造を有する化合物(ポリチオフェン、チオフェン誘導体)を含有する。

これらの化合物は薄膜性が良好なので、親水性にバラツキのあるITO透明電極表面上でも均一な薄膜を形成することができ、発光効率が向上し、信頼性も向上する。

【0186】

これらは、後述する蛍光性物質と組み合わせてドーパントのホスト物質として用いられる。

このように蛍光性物質(ドーパント)と組み合わせて使用することによって、ホスト物質の発光波長

Furthermore, with this invention, aforementioned sort, as for luminescent layer it is possible to be something which possesses other function, it is possible as for example positive hole injection transporting luminescent layer, electron implantation transporting luminescent layer.

[0183]

<luminescent layer> luminescent layer is something which possesses function which forms exciton positive hole (hole) and with those transport function, positive hole of injection function, of electron and the recombination of electron.

2 layers or more it is possible to laminate luminescent layer.

[0184]

neutral layer is used to luminescent layer relatively for electronic, it is undesirable.

neutral neutral material unit, or it is possible to combine constituting method of layer, and, combining electron implantation transporting compound and hole fill transporting compound it is possible to neutral as entire layer.

However, it combines and when electron accepting and electron donating of material are strong extremely, it can see shift phenomena of decrease or light emitting wavelength of exciton or other fluorescence, is not desirable.

Concerning mixed layer which combines electron implantation transporting compound and hole fill transporting compound it mentions later.

[0185]

luminescent layer of organic electroluminescent element of this invention compound which possesses the skeleton which is displayed with above Formula (1) (tetra aryl phenylenediamine derivative), contains compound (polythiophene, thiophene derivative) which possesses structure which is shown with compound and above Formula (2) which possess structure which is shown with compound, above Formula (1) which possesses structure which is shown with above Formula (1) and structure which is shown with above Formula (2).

Because these compound thin film property are satisfactory, forms uniform thin film even on ITO transparent electrode surface which has variation in hydrophilicity to be possible, light emission efficiency improves, also reliability improves.

[0186]

These are used as host substance of dopant combining with fluorescence substance which it mentions later.

This way light emitting wave length characteristic of host substance it changes fluorescence substance (dopant) with

特性を変化させることができ、長波長の発光が可能になるとともに、素子の発光効率や安定性が向上する。

【0187】

上記のテトラアリアルフェニレンジアミン誘導体または上記のポリチオフェン、チオフェン誘導体の含有量は 30~99.9wt%、特に 60~98wt%であることが好ましい。

蛍光性物質の含有量は 0.01~50wt%、さらには 0.01~20wt%であることが好ましい。

【0188】

また、本発明の有機 EL 素子の発光層は、発光波長の異なる 2 層以上を積層することも好ましく、その際、陽極上に、薄膜性が良好な上記のテトラアリアルフェニレンジアミン誘導体または上記のポリチオフェン、チオフェン誘導体を含有する層を積層することが好ましい。

また、各層を形成する各々の成分で濃度勾配を設けた傾斜構造層を形成し、駆動電圧の低下と耐久性の向上を図ることも好ましい。

この場合、混合部分は全体の 1/99~99/1 であることが好ましい。

【0189】

また、発光層が発光波長の異なる領域を有する構成としてもよい。

【0190】

発光層は、上記一般式(I)で表される骨格を有する化合物(テトラアリアルフェニレンジアミン誘導体)と蛍光物質とを含有する層と、後述するテトラアリアルベンジジン誘導体と蛍光物質とを含有する層とから成ることが特に好ましい。

蛍光物質としては、ルブレン等のナフタセン誘導体が好ましい。

この場合、陽極上に、テトラアリアルフェニレンジアミン誘導体を含有する層を設けることが好ましい。

このような積層順とすることによって、駆動電圧が低下し、電流リークの発生やダークスポットの発生・成長を防ぐことができる。

この場合も、テトラアリアルフェニレンジアミン誘導体と蛍光物質とを含有する層と、テトラアリー

combining you use with , it to be possible, as light emitting of long wavelength becomes possible, light emission efficiency and stability of element improve.

【0187】

Above-mentioned tetra aryl phenylenediamine derivative or content of above-mentioned polythiophene、 thiophene derivative is 30 - 99.9 wt%、 especially 60 - 98 wt%、 it is desirable .

content of fluorescence substance 0.01 - 50 wt%、 furthermore is 0.01 - 20 wt%、 it is desirable .

【0188】

In addition, luminescent layer of organic electroluminescent element of this invention laminating 2 layers or more where light emitting wave length differs is desirable, at that occasion, on the anode, laminates layer which contains above-mentioned tetra aryl phenylenediamine derivative or above-mentioned polythiophene、 thiophene derivative where thin film property is satisfactory is desirable.

In addition, gradient structure layer which provides concentration gradient with each component which forms each layer is formed, also it is desirable to assure the improvement of decrease and durability of drive voltage.

In this case, mixing part amount is entirety 1/99 - 99/1, it is desirable.

【0189】

In addition, it is possible as constitution which possesses the domain where luminescent layer differs light emitting wave length.

【0190】

luminescent layer compound which possesses skeleton which is displayed with above-mentioned General Formula (1) (tetra aryl phenylenediamine derivative) with layer which contains the phosphor and, consists of layer which contains tetra aryl benzidine derivative and the phosphor which it mentions later, especially it is desirable .

As phosphor, rubrene or other naphthacene derivative is desirable.

In this case, on anode, layer which contains tetra aryl phenylenediamine derivative is provided, it is desirable .

It makes this kind of lamination sequence, drive voltage decreases with , the generation and growth of occurrence and dark spot of current leakage is prevented, is possible .

In this case, between layer which contains tetra aryl phenylenediamine derivative and phosphor and layer which

ルベンジジン誘導体と蛍光物質とを含有する層との間に、各層を形成する各々の成分で濃度勾配を設けた傾斜構造層を形成することも好ましい。

【0191】

また、本発明の発光層としては、少なくとも 1 種以上の正孔注入輸送性化合物と少なくとも 1 種以上の電子注入輸送性化合物との混合層とすることも好ましく、この混合層中に蛍光性物質をドーパントとして含有させることが好ましい。

このような混合層における蛍光性物質ドーパントの含有量は、0.01~20wt%、さらには 0.1~15wt% とすることが好ましい。

混合層は、化合物同士が均一に混合している方が好ましいが、場合によっては、化合物が島状に存在するものであってもよい。

【0192】

混合層では、キャリアのホッピング伝導パスができるため、各キャリアは極性的に有利な物質中を移動し、逆の極性のキャリア注入は起こりにくくなるので、有機化合物がダメージを受けにくくなり、素子寿命がのびるという利点がある。

また、蛍光性物質をこのような混合層に含有させることにより、混合層自体のもつ発光波長特性を変化させることができ、発光波長を長波長に移行させることができるとともに、発光強度を高め、かつ、素子の安定性が向上する。

【0193】

発光層を少なくとも 1 種以上の正孔注入輸送性化合物と少なくとも 1 種以上の電子注入輸送性化合物との混合層とする場合の混合比は、それぞれのキャリア移動度とキャリア濃度によるが、一般的には、正孔注入輸送性化合物/電子注入輸送性化合物の重量比が、1/99~99/1、さらには 10/90~90/10、特に 20/80~80/20 程度となるようにすることが好ましい。

【0194】

また、混合層の厚さは、分子層一層に相当する厚みから、有機化合物層の膜厚未満とすることが好ましく、具体的には 1~1000nm、さらには 5~600nm、特に 5~500nm とすることが好ましい。

contains tetra aryl benzidine derivative and phosphor, also it is undesirable to form gradient structure layer which provides concentration gradient with each component which forms each layer.

[0191]

As luminescent layer of <mixed layer> and this invention, also it is desirable, contains fluorescence substance in this mixed layer to make positive hole injection transporting compound of at least 1 kind and mixed layer of electron implantation transporting compound of at least 1 kind, is desirable as dopant.

content of fluorescence substance dopant in this kind of mixed layer 0.01 - 20 wt%, furthermore makes 0.1 - 15 wt%, it is desirable.

As for mixed layer, one which compound is mixed to uniform is undesirable, but when depending, it is possible to be something where compound exists in island.

[0192]

With mixed layer, because hopping conduction path of carrier is possible, each carrier to move through beneficial substance polarity, because carrier injection of polarity of opposite becomes difficult to happen, organic compound becomes difficult to receive damage, there is a benefit that element lifetime extends.

In addition, light emitting wave length characteristic which mixed layer itself has by containing fluorescence substance in this kind of mixed layer, it changes it to be possible, as light emitting wave length it can move to long wavelength, light emission intensity is raised, at same time, stability of element improves.

[0193]

luminescent layer respective degree of carrier movement and with carrier concentration, generally, weight ratio of positive hole injection transporting compound/electron implantation transporting compound, 1/99 - 99/1, furthermore 10/90 - 90/10, try proportion when it makes positive hole injection transporting compound of at least 1 kind and the mixed layer of electron implantation transporting compound of at least 1 kind, to become especially 20/80 - 80/20 extent, it is desirable.

[0194]

In addition, thickness of mixed layer, from thickness which molecular layer more is suitable, makes under film thickness of organic compound layer, it is undesirable, 1 - 1000 nm, furthermore it makes 5 - 600 nm, especially 5 - 500 nm concretely, it is desirable.

[0195]

混合層に用いられる電子注入輸送性化合物としては、後述する電子注入輸送層用の化合物の中から選択すればよい。

中でも、キノリン誘導体、さらには 8-キノリノールないしその誘導体を配位子とする金属錯体、特にトリス(8-キノリノール)アルミニウム(AlQ3)を用いることが好ましい。

また、後述するフェニルアントラセン誘導体、テトラアリアルエテン誘導体、テトラアリアルアミン誘導体を用いることも好ましい。

これらの化合物は、1 種のみを用いても、2 種以上を併用してもよい。

[0196]

混合層に用いられる正孔注入輸送性化合物には、例えば、特開昭 63-295695 号公報、特開平 2-191694 号公報、特開平 3-792 号公報、特開平 5-234681 号公報、特開平 5-239455 号公報、特開平 5-299174 号公報、特開平 7-126225 号公報、特開平 7-126226 号公報、特開平 8-100172 号公報、EP0650955A1 等に記載されている各種有機化合物を用いることができる。

例えば、テトラアリアルベンジジン化合物(トリアルリアルジアミンないしトリフェニルジアミン:TPD)、芳香族三級アミン、ヒドラゾン誘導体、カルバゾール誘導体、トリアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、アミノ基を有するオキサジアゾール誘導体等である。

これらの化合物は、1 種のみを用いても、2 種以上を併用してもよい。

[0197]

正孔注入輸送性の化合物としては、強い蛍光を持ったアミン誘導体、例えばテトラアリアルベンジジン誘導体、トリアルリアルアミン誘導体を用いることが好ましい。

さらには、スチリルアミン誘導体、芳香族縮合環を持つアミン誘導体を用いてもよい。

特にテトラアリアルベンジジン誘導体誘導体を用いることが好ましい。

[0195]

If it should have selected from midst of compound for electron-implanted transport layer which it mentions later as electron implantation transporting compound which is used for mixed layer.

quinoline derivative、 furthermore 8 -quinolinol or metal complex、 especially tris (8 -quinolinolato ) aluminum (AlQ3 ) which designates its derivative as ligand is used even among them, it is desirable .

In addition, also it is desirable to use phenyl anthracene derivative、 tetra aryl ethene derivative、 tetra aryl amine derivative which it mentions later.

These compound, making use of only 1 kind and it may jointly use 2 kinds or more.

[0196]

Various organic compound which are stated in for example Japan Unexamined Patent Publication Showa 63- 295695 disclosure、 Japan Unexamined Patent Publication Hei 2-191694 disclosure、 Japan Unexamined Patent Publication Hei 3- 792 disclosure、 Japan Unexamined Patent Publication Hei 5-234681 disclosure、 Japan Unexamined Patent Publication Hei 5-239455 disclosure、 Japan Unexamined Patent Publication Hei 5-299174 disclosure、 Japan Unexamined Patent Publication Hei 7-126225 disclosure、 Japan Unexamined Patent Publication Hei 7-126226 disclosure、 Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-100172 disclosure、 European Patent 0650955A1 etc can be used to the positive hole injection transporting compound which is used for mixed layer.

for example tetra aryl benzidine compound (triaryl diamine or triphenyl diamine: TPD ), it is a oxadiazole derivative etc which possesses aromatic tertiary amine、 hydrazone derivative、 carbazole derivative、 triazole derivative、 imidazole derivative、 amino group.

These compound, making use of only 1 kind and it may jointly use 2 kinds or more.

[0197]

As compound of positive hole injection transporting, amine derivative、 for example tetra aryl benzidine derivative、 triaryl amine derivative which had strong fluorescence is used, it is desirable .

Furthermore, making use of amine derivative which has styryl amine derivative、 aromatic fused ring it is good.

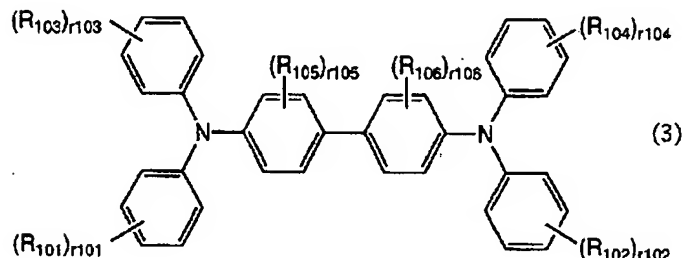
Especially, tetra aryl benzidine derivative derivative is used, it is desirable .

【0198】

テトラアリールベンジジン誘導体は、下記式(3)で表される。

【0199】

【化 45】



【0200】

化 45 について説明すると、 $R_{101} \sim R_{104}$  は、それぞれアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはハロゲン原子を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

また、 $R_{101} \sim R_{104}$  のうちの少なくとも 1 個はアリール基である。

$r_{101} \sim r_{104}$  は、それぞれ 0 または 1~5 の整数であり、 $r_{101} \sim r_{104}$  は同時に 0 になることはない。

従って、 $r_{101} + r_{102} + r_{103} + r_{104}$  は 1 以上の整数であり、少なくとも 1 つのアリール基が存在する条件を満たす数である。

$R_{105}$  および  $R_{106}$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アミノ基またはハロゲン原子を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

$r_{105}$  および  $r_{106}$  は、それぞれ 0 または 1~4 の整数である。

【0201】

$R_{101} \sim R_{104}$  で表されるアリール基としては、単環もしくは多環のものであってよく、縮合環や環集合も含まれる。

総炭素数は 6~20 のものが好ましく、置換基を有していてもよい。

この場合の置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。

具体的には、フェニル基、(o-, m-, p-)トリル基、ピレニル基、ペリレニル基、コロネニル基、ナフチル基、アントリル基、ビフェニル基、フェニルア

【0198】

<tetra aryl benzidine derivative> tetra aryl benzidine derivative is displayed with below-mentioned Formula (3).

【0199】

[Chemical Formula 45]

【0200】

When you explain concerning Chemical Formula 4 5,  $R_{101} \sim R_{104}$  displays the respective aryl group, alkyl group, alkoxy group, aryloxy group or halogen atom, these being same, may be something which differs.

In addition, at least one among  $R_{101} \sim R_{104}$  is aryl group.

As for  $r_{101} \sim r_{104}$ , respectively with integer of 0 or 1~5, as for the  $r_{101} \sim r_{104}$  there are not times when it becomes simultaneously 0.

Therefore,  $r_{101} + r_{102} + r_{103} + r_{104}$  with integer of 1 or more, is a quantity which fills up condition where aryl group of at least one exists.

$R_{105}$  and  $R_{106}$  display alkyl group, alkoxy group, amino group or halogen atom respectively, these being same, may be something which differs.

$r_{105}$  and  $r_{106}$  are integer of 0 or 1~4 respectively.

【0201】

It is possible to be something of monocycle or polycycle as aryl group which is displayed with  $R_{101} \sim R_{104}$ , also fused ring and ring fusion are included.

total number of carbon atoms thing 6 - 20 to be desirable, optionally substituted.

As substituent in this case, you can list alkyl group, alkoxy group, aryl group, aryloxy group, amino group, halogen atom etc.

Concretely, you can list phenyl group, (o-, m-, p-) tolyl group, pyrenyl group, perylenyl group, coronenyl basis and naphthyl group, anthryl group, biphenyl group,

ントリル基、トリルアントリル基等が挙げられ、特にフェニル基が好ましく、アリール基、特にフェニル基の結合位置は 3 位(N の結合位置に対してメタ位)または 4 位(N の結合位置に対してパラ位)であることが好ましい。

#### [0202]

$R_{101} \sim R_{104}$  で表されるアルキル基としては、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素数 1~10 のものが好ましく、置換基を有していてもよい。

この場合の置換基としてはアリール基と同様のものが挙げられる。

具体的には、メチル基、エチル基、(n-,i-)プロピル基、(n-,i-,s-,t-)ブチル基等が挙げられる。

#### [0203]

$R_{101} \sim R_{104}$  で表されるアルコキシ基としては、アルキル部分の炭素数 1~6 のものが好ましく、具体的にはメキシ基、エトキシ基、t-ブトキシ基等が挙げられる。

アルコキシ基はさらに置換されていてもよい。

#### [0204]

$R_{101} \sim R_{104}$  で表されるアリールオキシ基としては、フェノキシ基、4-メチルフェノキシ基、4-(t-ブチル)フェノキシ基等が挙げられる。

#### [0205]

$R_{101} \sim R_{104}$  で表されるハロゲン原子としては、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

#### [0206]

$R_{101} \sim R_{104}$  のうちの少なくとも 1 個はアリール基であるが、特に  $R_{101} \sim R_{104}$  として 1 分子中にアリール基が 2~4 個存在することが好ましく、 $r_{101} \sim r_{104}$  の中の 2~4 個が 1 以上の整数であることが好ましい。

特に、アリール基は分子中に総計で 2~4 個存在し、好ましくは  $r_{101} \sim r_{104}$  の中の 2~4 個が 1 であり、さらに好ましくは  $r_{101} \sim r_{104}$  が 1 であり、含まれる  $R_{101} \sim R_{104}$  のすべてがアリール基であることが好ましい。

すなわち、分子中の  $R_{101} \sim R_{104}$  が置換していてもよい 4 個のベンゼン環には総計で 2~4 個のアリール基が存在し、2~4 個のアリール基は 4 個のベンゼン環の中で同一のものに結合していても、異なるものに結合していてもよいが、特に 2~4 個のアリール基がそれぞれ異なるベンゼン環に結合していることが好ましい。

phenyl anthryl group、tolyl anthryl group etc, the especially phenyl group is desirable, bond position of aryl group、especially phenyl group 3-position (Vis-a-vis bond position of N meta position) or is 4 position (Vis-a-vis bond position of N para position), is desirable.

#### [0202]

Also to be possible in to be something which possesses branch as alkyl group which is displayed with  $R_{101} \sim R_{104}$ , those of carbon number 1~10 to be desirable, optionally substituted. straight chain

You can list those which are similar to aryl group as substituent in this case.

Concretely, you can list methyl group、ethyl group、(n-, i-) propyl group、(n-, i-, s-, t-) butyl group etc.

#### [0203]

Those of carbon number 1~6 of alkyl portion are desirable as alkoxy group which is displayed with  $R_{101} \sim R_{104}$ , can list methoxy group、ethoxy group、t-butoxy group etc concretely.

As for alkoxy group furthermore optionally substitutable.

#### [0204]

You can list phenoxy group、4-methyl phenoxy group、4-(t-butyl) phenoxy group etc as aryloxy group which is displayed with  $R_{101} \sim R_{104}$ .

#### [0205]

You can list chlorine atom、bromine atom etc as halogen atom which is displayed with the  $R_{101} \sim R_{104}$ .

#### [0206]

at least one among  $R_{101} \sim R_{104}$  is aryl group, but aryl group 2 - 4 exists in 1 molecule as especially  $R_{101} \sim R_{104}$  to be desirable, 2 - 4 in the  $r_{101} \sim r_{104}$  is integer of 1 or more, it is desirable.

Especially, aryl group in molecule 2 - 4 exists with total, 2 - 4 in preferably  $r_{101} \sim r_{104}$  at 1, furthermore preferably  $r_{101} \sim r_{104}$  at 1, everything of  $R_{101} \sim R_{104}$  which is included is aryl group, it is desirable.

$R_{101} \sim R_{104}$  in namely, molecule in benzene ring of optionally substitutable 4 aryl group of 2 - 4 exists with total, aryl group of 2 - 4 also having connected to same ones in benzene ring of 4 it has been allowed to have connected to those which differ, but it has connected to benzene ring where especially aryl group 2 - 4 differs respectively, it is desirable.

そして、さらに少なくとも 2 個のアリール基が N の結合位置に対してパラ位またはメタ位に結合していることがより好ましい。

また、この際アリール基としては少なくとも 1 個がフェニル基であることが好ましく、すなわちアリール基とベンゼン環が一緒になって N 原子に対し 4-または 3-ビフェニル基を形成することが好ましい。

特に 2~4 個が 4-または 3-ビフェニル基であることが好ましい。

4-または 3-ビフェニル基は一方のみでも両者が混在していてもよい。

また、フェニル基以外のアリール基としては、特に(1-,2-)ナフチル基、(1-,2-,9-)アントリル基、ピレニル基、ペリレニル基、コロネニル基などが好ましく、フェニル基以外のアリール基も N の結合位置に対しパラ位またはメタ位に結合することが好ましい。

これらのアリール基もフェニル基と混在していてもよい。

#### 【0207】

化 45 において、 $R_{105}$ 、 $R_{106}$  で表されるアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子としては、 $R_{101}$  ~  $R_{104}$  のところで挙げたものと同様のものが挙げられる。

#### 【0208】

$R_{105}$ 、 $R_{106}$  で表されるアミノ基としては、無置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換基を有するものが好ましく、具体的にはジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジビフェニルアミノ基、N-フェニル-N-トリルアミノ基、N-フェニル-N-ナフチルアミノ基、N-フェニル-N-ビフェニルアミノ基、N-フェニル-N-アントリルアミノ基、N-フェニル-N-ピレニルアミノ基、ジナフチルアミノ基、ジアントリルアミノ基、ジピレニルアミノ基等が挙げられる。

#### 【0209】

$r_{105}$ 、 $r_{106}$  は、ともに 0 であることが好ましく、2 つのアリールアミノ基を連結するビフェニレン基は無置換のものが好ましい。

#### 【0210】

なお、 $r_{101}$  ~  $r_{104}$  が 2 以上の整数のとき、各  $R_{101}$  ~  $R_{104}$  同士は各々同一でも異なるものであってもよい。

And, furthermore aryl group of at least two it has connected to para position or meta position vis-a-vis bond position of N, it is more desirable.

In addition, in this case at least one is phenyl group as aryl group, it is desirable, namely aryl group and benzene ring becoming simultaneous, 4- or forms 3-biphenyl group vis-a-vis N atom is desirable.

Especially 2-4 is 4- or 3-biphenyl group, it is desirable.

4- Or 3-biphenyl group have been allowed to have existed together both even only one side.

In addition, especially (1-2-) naphthyl group, (1-2-9-) anthryl group, pyrenyl group, perylenyl group, coronenyl basis etc is desirable as aryl group other than phenyl group, connects to para position or meta position also aryl group other than phenyl group vis-a-vis bond position of N is desirable.

Also these aryl group have been allowed to have existed together phenyl group.

#### 【0207】

You can list those which are similar to those which are listed at the place of  $R_{101}$  ~  $R_{104}$  in Chemical Formula 45, as alkyl group, alkoxy group, halogen atom which is displayed with  $R_{105}$ 、 $R_{106}$ .

#### 【0208】

And it is possible in to be something which possesses substituent, as amino group which is displayed with  $R_{105}$ 、 $R_{106}$ , but those which possess substituent are desirable, you can list dimethylamino group, diethyl amino base and the diphenylamino group, ditolyl amino group, di biphenyl amino group, N-phenyl-N-tolyl amino group, N-phenyl-N-naphthyl amino group, N-phenyl-N-biphenyl amino group, N-phenyl-N-anthryl amino group, N-phenyl-N-pyrenyl amino group, dinaphthyl amino group, Jean trill amino group, di pyrenyl amino group etc concretely, unsubstituted

#### 【0209】

$r_{105}$ 、 $r_{106}$  is 0 together, it is desirable, biphenylene group which connects 2 aryl amino group unsubstituted ones is desirable.

#### 【0210】

Furthermore, when  $r_{101}$  ~  $r_{104}$  is integer of 2 or more, each  $R_{101}$  ~  $R_{104}$  being each same, it is possible to be something which differs.



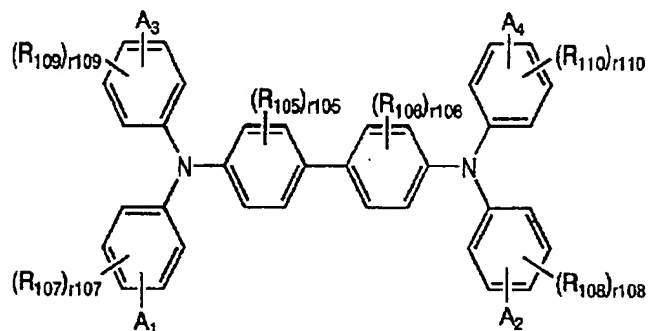
また、 $r_{105}$ 、 $r_{106}$  が 2 以上の整数のとき、 $R_{105}$  同士、 $R_{106}$  同士は同一でも異なるものであってもよい。

【0211】

化 45 の化合物の中でも、下記の化 46 または化 47 で表される化合物が好ましい。

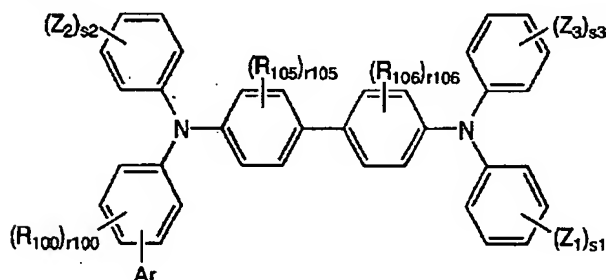
【0212】

【化 46】



【0213】

【化 47】



【0214】

まず、化 46 について説明すると、 $A_1 \sim A_4$  は、それぞれ N の結合位置に対してパラ位(4 位)またはメタ位(3 位)に結合するフェニル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

これらのフェニル基はさらに置換基を有していてもよく、この場合の置換基としては  $R_{101} \sim R_{104}$  で表されるアリール基のところで挙げた置換基と同様のものを挙げることができる。

【0215】

$R_{107} \sim R_{110}$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アリーール基、アリーールオキシ基またはハロゲン

In addition, when  $r_{105}$ 、 $r_{106}$  is integer of 2 or more,  $R_{105}$  , the  $R_{106}$  being same, it is possible to be something which differs.

【0211】

compound which is displayed with below-mentioned Chemical Formula 4 6 or the Chemical Formula 4 7 is desirable even in compound of Chemical Formula 4 5.

【0212】

[Chemical Formula 46]

【0213】

[Chemical Formula 47]

【0214】

First, when you explain concerning Chemical Formula 4 6,  $A_1 \sim A_4$  para position (4 position )or displays phenyl group which is connected to meta position (3 -position ) vis-a-vis the bond position of respective N, these being same, may be something which differs.

Those which are similar to substituent which is listed at place of aryl group these phenyl group furthermore have been allowed to have possessed substituent, as substituent in this case with  $R_{101} \sim R_{104}$  are displayed can be listed.

【0215】

$R_{107} \sim R_{110}$  displays respective alkyl group、alkoxy group、aryl group、aryloxy group or halogen atom, these being

ン原子を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

これらの具体例としては化 45 の  $R_{101} \sim R_{104}$  のところで挙げたものと同様のものを挙げるができる。

【0216】

$r_{107} \sim r_{110}$  は、それぞれ 0 または 1~4 の整数であり、 $r_{107} \sim r_{110}$  は 0 であることが好ましい。

【0217】

なお、 $r_{107} \sim r_{110}$  が各々 2 以上の整数であるとき、各  $R_{107} \sim R_{110}$  同士は同一でも異なるものであってもよい。

【0218】

また、化 46 において、 $R_{105}$ 、 $R_{106}$ 、 $r_{105}$  および  $r_{106}$  は化 45 のものと同義であり、 $r_{105} = r_{106} = 0$  であることが好ましい。

【0219】

次に、化 47 について説明すると、Ar は、N の結合位置のパラ位(4 位)またはメタ位(3 位)に結合するアリール基を表す。

アリール基としては、化 45 の  $R_{101} \sim R_{104}$  で表されるアリール基のところで例示したものと同様のものを挙げることができ、特にフェニル基が好ましい。

この場合、アリール基はさらに置換されていてもよく、このような置換基としては  $R_{101} \sim R_{104}$  のところで例示したものを挙げるができる。

置換基としてはアミノ基が好ましい。

ただし、アミノ基は、場合によっては環化して複素環基となってもよい。

具体的には化 45 の  $R_{105}$ 、 $R_{106}$  で表されるアミノ基の中から選択することができる。

【0220】

$Z_1$ 、 $Z_2$  および  $Z_3$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基またはハロゲン原子を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

これらの具体例としては化 45 の  $R_{101} \sim R_{104}$  のところで挙げたものと同様のものを挙げるができる。

ただし、 $Z_1$ 、 $Z_2$  および  $Z_3$  のうちの少なくとも 1 個は N の結合位置のパラ位またはメタ位に結

thesame, may be something which differs.

Those which are similar to those which are listed at place of the  $R_{101} \sim R_{104}$  of Chemical Formula 4 5 as these embodiment can be listed.

[0216]

As for  $r_{107} \sim r_{110}$ , with integer of 0 or 1~4, as for  $r_{107} \sim r_{110}$  0 is respectively, it is desirable .

[0217]

Furthermore, when  $r_{107} \sim r_{110}$  is integer of each 2 or more, each  $R_{107} \sim R_{110}$  being same, it is possible to be something which differs.

[0218]

In addition,  $R_{105}$ 、 $R_{106}$ 、 $r_{105}$  and  $r_{106}$  those of Chemical Formula 4 5 and beingsynonymous, are  $r_{105} = r_{106} = 0$  in Chemical Formula 4 6, it is desirable .

[0219]

When next, you explain concerning Chemical Formula 4 7, Ar para position of bond position of N (4 position ) or displays aryl group which is connected to meta position (3 -position ).

As aryl group, those which are similar to those which were illustratedat place of aryl group which is displayed with  $R_{101} \sim R_{104}$  of the Chemical Formula 4 5 are listed, it is possible , especially phenyl group isdesirable.

In this case, aryl group can list those which were illustrated at theplace of  $R_{101} \sim R_{104}$  furthermore as this kind of substituent of optionally substitutable、.

amino group is desirable as substituent.

However, amino group, when depending, cyclization doing, has been allowedto have become heterocyclic group.

It can select from midst of amino group which is displayedconcretely with  $R_{105}$ 、 $R_{106}$  of Chemical Formula 4 5.

[0220]

$Z_1$ 、 $Z_2$  and  $Z_3$  display respective alkyl group、alkoxy group、aryl group、aryloxy group or halogen atom,these being same, may be something which differs.

Those which are similar to those which are listed at place of the  $R_{101} \sim R_{104}$  of Chemical Formula 4 5 as these embodiment can be listed.

However, at least one inside  $Z_1$ 、 $Z_2$  and  $Z_3$  displays aryl group which is connected to para position or meta position of

合するアリール基を表すが、Ar、 $Z_1 \sim Z_3$  のすべてが同時に N の結合位置に対してパラ位またはメタ位に結合するフェニル基となることはなく、4 個のベンゼン環の 2-3 個がパラ位またはメタ位にそれぞれ 1 個のアリール基を有することが好ましい。

従って、 $Z_1 \sim Z_2$  のうちの 1 個または 2 個がこのようなアリール基であることが好ましい。

アリール基としては、(1-,2-)ナフチル基、(1-,2-,9-)アントリル基、ピレニル基、ペリレニル基、コロネニル基等も好ましいが、フェニル基が最も好ましい。

#### 【0221】

また、 $Z_1 \sim Z_3$  で表される上記アリール基は置換基を有していてもよく、置換基としては  $R_{101} \sim R_{104}$  のところで例示したものを挙げることができる。

特に、置換基としてはアミノ基が好ましく、具体的には  $R_{105}$ 、 $R_{106}$  で表されるアミノ基から選択することができる。

$s1 \sim s3$  は、それぞれ 0 または 1~5 の整数であるが、これらは同時に 0 になることはなく、その和は 1 以上の整数である。

$s1 \sim s3$  は、それぞれ 0 または 1 であることが好ましく、さらには  $s1 \sim s3$  の 1 個または 2 個が 1 であり、残りが 0 であるような組合せが好ましい。

この場合、 $s1 \sim s3$  が 1 であるときに含まれる  $Z_1 \sim Z_3$  は、N の結合位置に対してパラ位またはメタ位に結合するアリール基、特にフェニル基であることが好ましい。

#### 【0222】

なお、 $s1 \sim s3$  が 2 以上の整数のとき、各  $Z_1 \sim Z_3$  同士は同一でも異なるものであってもよい。

#### 【0223】

また、化 47 の  $R_{100}$  および  $r_{100}$  は化 46 の  $R_{107}$  および  $r_{107}$  と各々同義であり、化 47 の  $R_{105}$ 、 $R_{106}$ 、 $r_{105}$  および  $r_{106}$  は化 46 のものと各々同義であり、好ましいものも同様である。

#### 【0224】

化 46 の化合物の中でも、化 48~化 53 で表される化合物が好ましい。

#### 【0225】

bond position of the N, but everything of Ar,  $Z_1 \sim Z_3$  simultaneously are not times when it becomes phenyl group which is connected to para position or meta position vis-a-vis bond position of N, 2 - 3 of benzene ring of 4 has aryl group of 1 respectively in para position or meta position, it is desirable .

Therefore, 1 or 2 among  $Z_1 \sim Z_2$  is this kind of aryl group, it is desirable .

As aryl group, also (1 - 2 - ) naphthyl group、(1 - 2 - 9 - ) anthryl group、pyrenyl group、perylene group、coronene group etc is desirable, but the phenyl group is most desirable.

#### [0221]

In addition, those above-mentioned aryl group which is displayed with  $Z_1 \sim Z_3$  has been allowed to have possessed substituent, as substituent at place of  $R_{101} \sim R_{104}$  illustrated can be listed.

Especially, it can select from amino group where amino group is desirable as substituent, is displayed concretely with  $R_{105}$ 、 $R_{106}$  .

$s1 \sim s3$  is integer of 0 or 1~5 respectively, but as for these there are not times when it becomes simultaneously 0, sum total is the integer of 1 or more.

$s1 \sim s3$  is 0 or 1 respectively, it is desirable , furthermore 1 or 2 of  $s1 \sim s3$  from 1, remainder 0, kind of combination which is is desirable.

In this case, when  $s1 \sim s3$  1 being,  $Z_1 \sim Z_3$  which is included is aryl group、especially phenyl group which is connected to para position or the meta position vis-a-vis bond position of N, it is desirable .

#### [0222]

Furthermore, when  $s1 \sim s3$  is integer of 2 or more, each  $Z_1 \sim Z_3$  being same, it is possible to be something which differs.

#### [0223]

In addition, as for  $R_{100}$  and  $r_{100}$  of Chemical Formula 4 7  $R_{107}$  and  $r_{107}$  of Chemical Formula 4 6 being each synonymy,  $R_{105}$ 、 $R_{106}$ 、 $r_{105}$  and  $r_{106}$  of Chemical Formula 4 7 those of Chemical Formula 4 6 being each synonymy, desirable ones are similar.

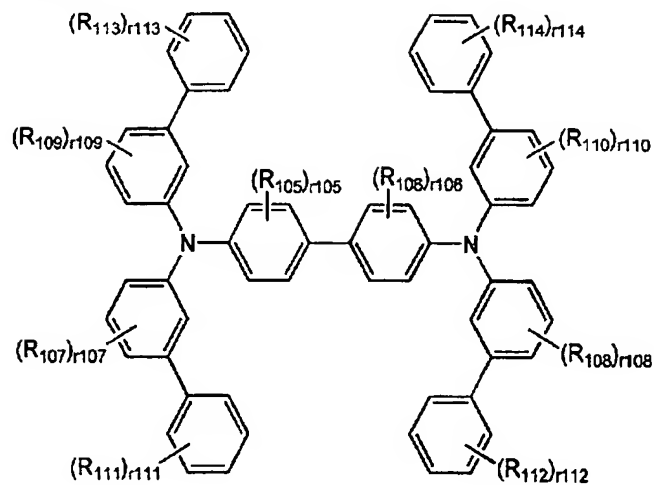
#### [0224]

compound which is displayed with Chemical Formula 4 8~Chemical Formula 5 3 is desirable even in the compound of Chemical Formula 4 6.

#### [0225]

【化 48】

[Chemical Formula 48]

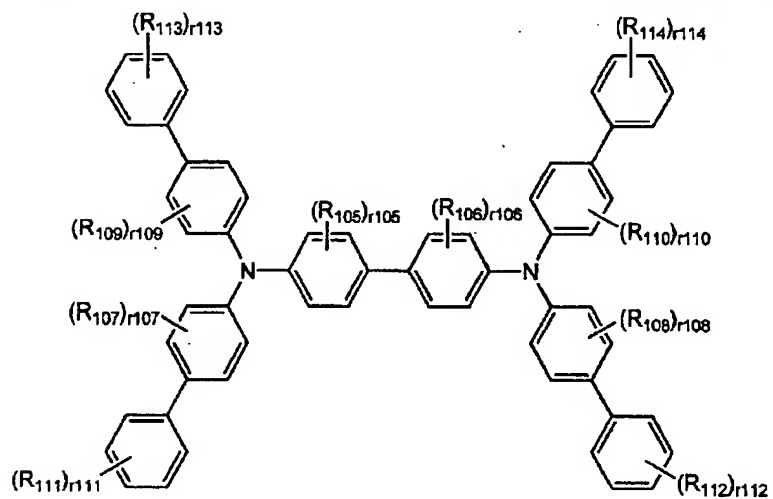


【0226】

[0226]

【化 49】

[Chemical Formula 49]

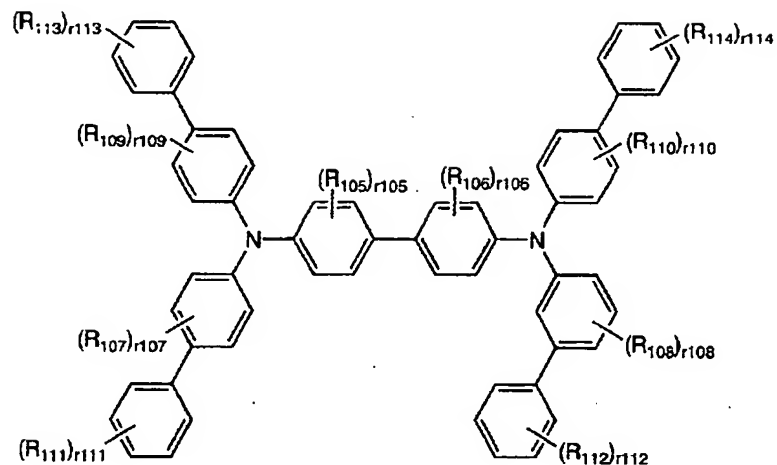


【0227】

[0227]

【化 50】

[Chemical Formula 50]

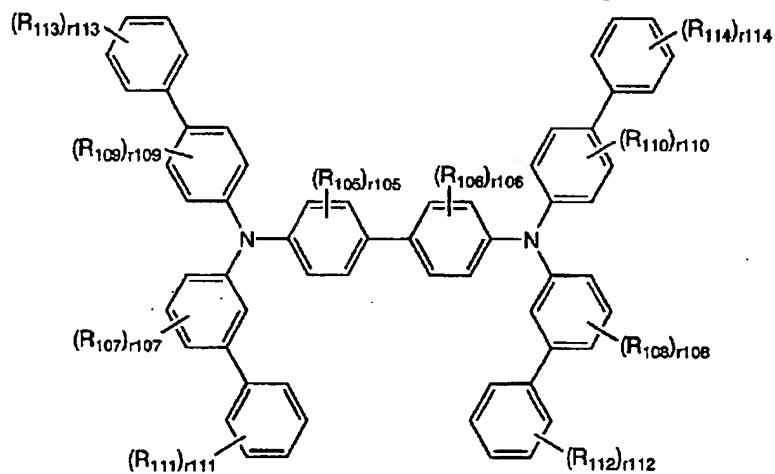


【0228】

[0228]

【化 51】

[Chemical Formula 51]

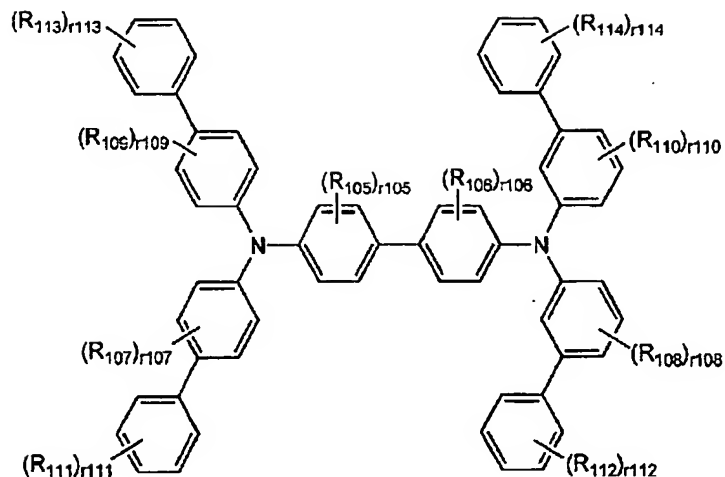


【0229】

[0229]

【化 52】

[Chemical Formula 52]

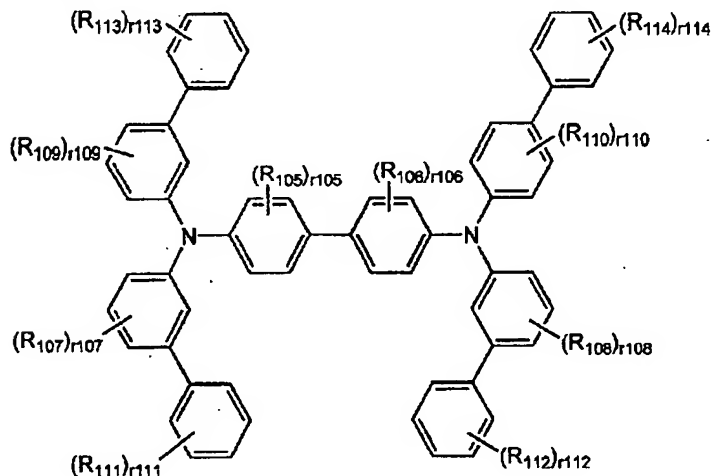


【0230】

【0230】

【化 53】

【Chemical Formula 53】



【0231】

【0231】

化 48~化 53 の各々において、 $R_{111} \sim R_{114}$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基またはハロゲン原子を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

In each of Chemical Formula 4 8~Chemical Formula 5 3,  $R_{111} \sim R_{114}$  displays respective alkyl group、alkoxy group、aryl group、aryloxy group or the halogen atom, these being same, may be something which differs.

これらの具体例としては  $R_{101} \sim R_{104}$  のところで挙げたものと同様のものを挙げることができる。

Those which are similar to those which are listed at place of the  $R_{101} \sim R_{104}$  as these embodiment can be listed.

【0232】

【0232】

$r_{111} \sim r_{114}$  はそれぞれ 0 または 1~5 の整数であり、 $r_{111} \sim r_{114}$  は、化 48~化 53 のいずれにおいても 0 であることが好ましい。

As for  $r_{111} \sim r_{114}$  respectively with integer of 0 or 1~5, as for the  $r_{111} \sim r_{114}$ , 0 is in which of Chemical Formula 4 8~Chemical Formula 5 3, it is desirable .

【0233】

【0233】

なお、 $r_{111} \sim r_{114}$  が各々 2 以上の整数であるとき、

Furthermore, when  $r_{111} \sim r_{114}$  is integer of each 2 or more, each

各  $R_{111} \sim R_{114}$  同士は同一でも異なるものであってもよい。

$R_{111} \sim R_{114}$  being same, it is possible to be something which differs.

【0234】

[0234]

化 48~化 53 の各々において、 $R_{105} \sim R_{110}$  および  $r_{105} \sim r_{110}$  は、それぞれ化 46 のものと同義であり、好ましいものも同様である。

In each of Chemical Formula 4 8~Chemical Formula 5 3,  $R_{105} \sim R_{110}$  and  $r_{105} \sim r_{110}$ , those of respective Chemical Formula 4 6 and being synonymous, desirable ones are similar.

【0235】

[0235]

一方、化 47 の化合物の中でも化 54~化 59 で表される化合物が好ましい。

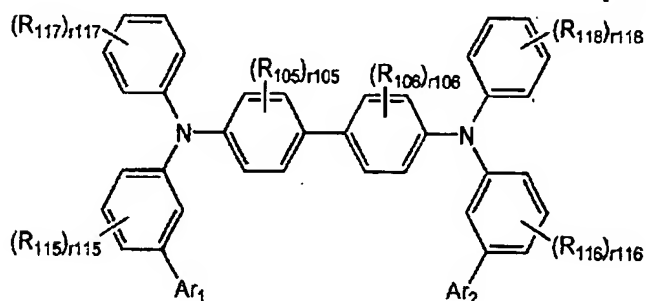
compound which on one hand, even in compound of Chemical Formula 4 7 is displayed with Chemical Formula 5 4~Chemical Formula 5 9 is desirable.

【0236】

[0236]

【化 54】

[Chemical Formula 54]

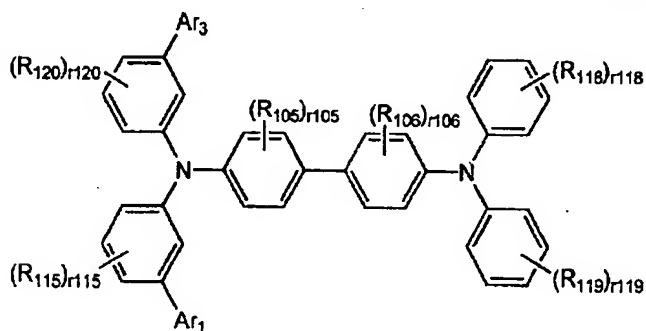


【0237】

[0237]

【化 55】

[Chemical Formula 55]

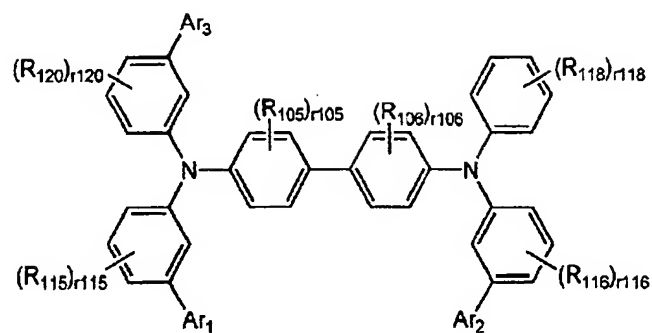


【0238】

[0238]

【化 56】

[Chemical Formula 56]

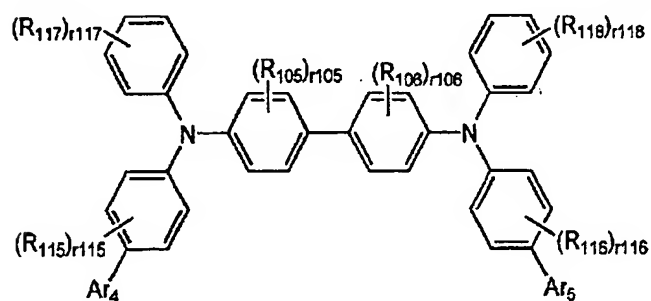


【0239】

[0239]

【化 57】

[Chemical Formula 57]

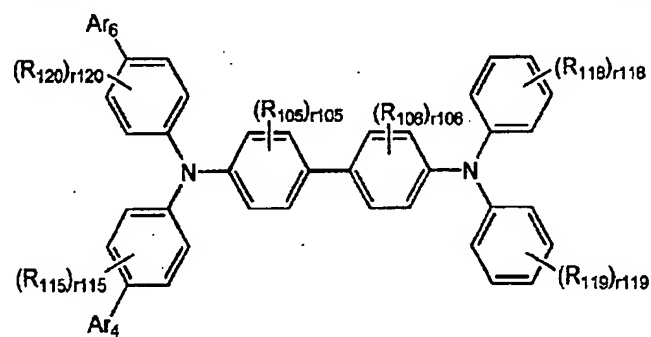


【0240】

[0240]

【化 58】

[Chemical Formula 58]



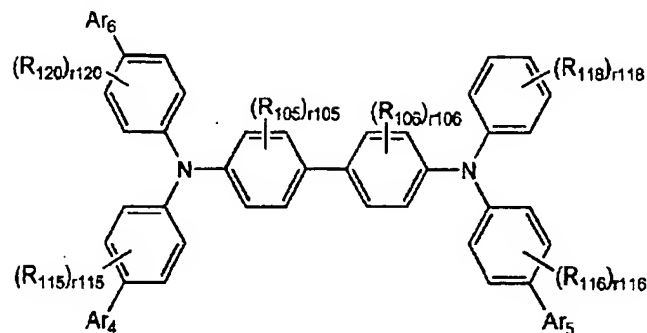
【0241】

[0241]

【化 59】

[Chemical Formula 59]





## 【0242】

化 54~化 59 の各々において、 $Ar_1 \sim Ar_6$  はそれぞれアリール基を表し、化 54 の  $Ar_1$  と  $Ar_2$ 、化 55 の  $Ar_1$  と  $Ar_3$ 、化 56 の  $Ar_1$  と  $Ar_2$  と  $Ar_3$ 、化 57 の  $Ar_4$  と  $Ar_5$ 、化 58 の  $Ar_4$  と  $Ar_6$ 、化 59 の  $Ar_4$  と  $Ar_5$  と  $Ar_6$  とは、それぞれ同一でも異なるものであってもよい。

アリール基の具体例としては化 45 の  $R_{101} \sim R_{104}$  のところで挙げたものと同様のものを挙げることができ、フェニル基が特に好ましい。

## 【0243】

化 54~化 59 の  $R_{115}$ 、化 54、化 56、化 57、化 59 の  $R_{116}$ 、化 55、化 56、化 58、化 59 の  $R_{120}$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基またはハロゲン原子を表し、化 54、化 57 の  $R_{115}$  と  $R_{116}$ 、化 55、化 58 の  $R_{115}$  と  $R_{120}$ 、化 56、化 59 の  $R_{115}$  と  $R_{116}$  と  $R_{120}$  とはそれぞれ同一でも異なるものであってもよい。

これらの具体例としては化 45 の  $R_{101} \sim R_{104}$  のところで挙げたものと同様のものを挙げることができる。

## 【0244】

化 54~化 59 の  $r_{115}$ 、化 54、化 56、化 57、化 59 の  $r_{116}$ 、化 55、化 56、化 58、化 59 の  $r_{120}$  は、0 または 1~4 の整数であるが、 $r_{115}$ 、 $r_{116}$ 、 $r_{120}$  は 0 であることが好ましい。

## 【0245】

## 【0242】

In each of Chemical Formula 5 4~Chemical Formula 5 9,  $Ar_1 \sim Ar_6$  displays aryl group respectively, the  $Ar_1$  of Chemical Formula 5 4 and  $Ar_1$  of  $Ar_2$ 、Chemical Formula 5 5 and  $Ar_1$  of the  $Ar_3$ 、Chemical Formula 5 6 and  $Ar_2$  and  $Ar_4$  of  $Ar_3$ 、Chemical Formula 5 7 and  $Ar_4$  of the  $Ar_5$ 、Chemical Formula 5 8 and  $Ar_4$  of  $Ar_6$ 、Chemical Formula 5 9 and  $Ar_5$  and  $Ar_6$ 、beingsame respectively, may be something which differs.

Those which are similar to those which are listed at place of the  $R_{101} \sim R_{104}$  of Chemical Formula 4 5 as embodiment of aryl group are listed, it is possible, phenyl group especially is desirable.

## 【0243】

$R_{120}$  of  $R_{116}$ 、Chemical Formula 5 5、Chemical Formula 5 6、Chemical Formula 5 8、Chemical Formula 5 9 of  $R_{115}$ 、Chemical Formula 5 4、Chemical Formula 5 6、Chemical Formula 5 7、Chemical Formula 5 9 of Chemical Formula 5 4~Chemical Formula 5 9 displays therespective alkyl group、alkoxy group、aryl group、aryloxy group or halogen atom, it is same as  $R_{115}$  of the Chemical Formula 5 4、Chemical Formula 5 7 and  $R_{115}$  of  $R_{116}$ 、Chemical Formula 5 5、Chemical Formula 5 8 and  $R_{115}$  of  $R_{120}$ 、Chemical Formula 5 6、Chemical Formula 5 9 and the  $R_{116}$  and  $R_{120}$  respectively and it is possible to be somethingwhich differs.

Those which are similar to those which are listed at place of the  $R_{101} \sim R_{104}$  of Chemical Formula 4 5 as these embodiment can be listed.

## 【0244】

$r_{120}$  of  $r_{116}$ 、Chemical Formula 5 5、Chemical Formula 5 6、Chemical Formula 5 8、Chemical Formula 5 9 of  $r_{115}$ 、Chemical Formula 5 4、Chemical Formula 5 6、Chemical Formula 5 7、Chemical Formula 5 9 of Chemical Formula 5 4~Chemical Formula 5 9 is integer of 0 or 1~4, but  $r_{115}$ 、 $r_{116}$ 、 $r_{120}$  is 0, it is desirable.

## 【0245】

化 54、化 57 の  $R_{117}$ 、化 54~化 59 の  $R_{118}$ 、化 55、化 58 の  $R_{119}$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはハロゲン原子を表し、化 54、化 57 の  $R_{117}$  と  $R_{118}$ 、化 55、化 58 の  $R_{118}$  と  $R_{119}$  とはそれぞれ同一でも異なるものであってもよい。

これらの具体例としては化 45 の  $R_{101} \sim R_{104}$  のところで挙げたものと同様のものを挙げるができる。

#### 【0246】

化 54、化 57 の  $r_{117}$ 、化 54~化 59 の  $r_{118}$ 、化 55、化 58 の  $r_{119}$  は、0 または 1~5 の整数であるが、 $r_{117}$ 、 $r_{118}$ 、 $r_{119}$  は 0 であることが好ましい。

#### 【0247】

なお、化 54~化 59 において、 $r_{115}$ 、 $r_{116}$ 、 $r_{120}$  が 2 以上の整数であるとき、 $R_{115}$  同士、 $R_{116}$  同士、 $R_{120}$  同士は各々同一でも異なるものであってもよく、 $r_{117}$ 、 $r_{118}$ 、 $r_{119}$  が 2 以上の整数であるとき、 $R_{117}$  同士、 $R_{118}$  同士、 $R_{119}$  同士は各々同一でも異なるものであってもよい。

#### 【0248】

化 54~化 59 の各々において、 $R_{105}$ 、 $R_{106}$ 、 $r_{105}$  および  $r_{106}$  は化 45 のものと同義であり、 $r_{105}=r_{106}=0$  であることが好ましい。

#### 【0249】

以下に、化 45 の化合物の具体例を示すが、本発明はこれに限定されるものではない。

なお、化 60、化 62、化 64、化 66、化 69、化 72、化 75、化 79、化 84、化 88、化 92、化 96 は一般式であり、化 61、化 63、化 65、化 67~68、化 70~71、化 73~74、化 76~78、化 80~83、化 85~87、化 89~91、化 93~95、化 97~100 に  $R_{101}$  等の組合せで具体例を示している。

この表示において、 $Ar_1 \sim Ar_6$  を除いて、すべて H のときは H で示しており、置換基が存在するときは置換基のみを示すものとし、他のものは H で示す。

$R_{119}$  of  $R_{118}$ 、Chemical Formula 5 5、Chemical Formula 5 8 of  $R_{117}$ 、Chemical Formula 5 4~Chemical Formula 5 9 of Chemical Formula 5 4、Chemical Formula 5 7 displays the respective alkyl group、alkoxy group、aryloxy group or halogen atom, it is same as  $R_{117}$  of the Chemical Formula 5 4、Chemical Formula 5 7 and  $R_{118}$  and  $R_{119}$  of  $R_{118}$ 、Chemical Formula 5 5、Chemical Formula 5 8 respectively and it is possible to be something which differs.

Those which are similar to those which are listed at place of the  $R_{101} \sim R_{104}$  of Chemical Formula 4 5 as these embodiment can be listed.

#### 【0246】

$r_{119}$  of  $r_{118}$ 、Chemical Formula 5 5、Chemical Formula 5 8 of  $r_{117}$ 、Chemical Formula 5 4~Chemical Formula 5 9 of Chemical Formula 5 4、Chemical Formula 5 7 is integer of 0 or 1~5, but  $r_{117}$ 、 $r_{118}$ 、 $r_{119}$  is 0, it is desirable .

#### 【0247】

Furthermore, when  $r_{115}$ 、 $r_{116}$ 、 $r_{120}$  is integer of 2 or more in Chemical Formula 5 4~Chemical Formula 5 9, the  $R_{115}$ 、 $R_{116}$ 、 $R_{120}$  being each same, it is possible to be something which differs, when  $r_{117}$ 、 $r_{118}$ 、 $r_{119}$  is integer of 2 or more, the  $R_{117}$ 、 $R_{118}$ 、 $R_{119}$  being each same, to be something which differs it is possible.

#### 【0248】

In each of Chemical Formula 5 4~Chemical Formula 5 9,  $R_{105}$ 、 $R_{106}$ 、 $r_{105}$  and  $r_{106}$  those of Chemical Formula 4 5 and being synonymous, are  $r_{105}=r_{106}=0$ , it is desirable .

#### 【0249】

Below, embodiment of compound of Chemical Formula 4 5 is shown, but this invention is not something which is limited in this.

Furthermore, Chemical Formula 6 0、Chemical Formula 6 2、Chemical Formula 6 4、Chemical Formula 6 6、Chemical Formula 6 9、Chemical Formula 7 2、Chemical Formula 7 5、Chemical Formula 7 9、Chemical Formula 8 4、Chemical Formula 8 8、Chemical Formula 9 2、Chemical Formula 9 6 with General Formula , in Chemical Formula 6 1、Chemical Formula 6 3、Chemical Formula 6 5、Chemical Formula 6 7~68、Chemical Formula 7 0~71、Chemical Formula 7 3~74、Chemical Formula 7 6~78、Chemical Formula 8 0~83、Chemical Formula 8 5~87、Chemical Formula 8 9~91、Chemical Formula 9 3~95、Chemical Formula 9 7~100 has shown the embodiment with  $R_{101}$  or other combination.

At time of this indicating, excluding  $Ar_1 \sim Ar_6$ , we have shown the time of all H with H, when substituent exists, show only the substituent, any other things it is a H, it means .

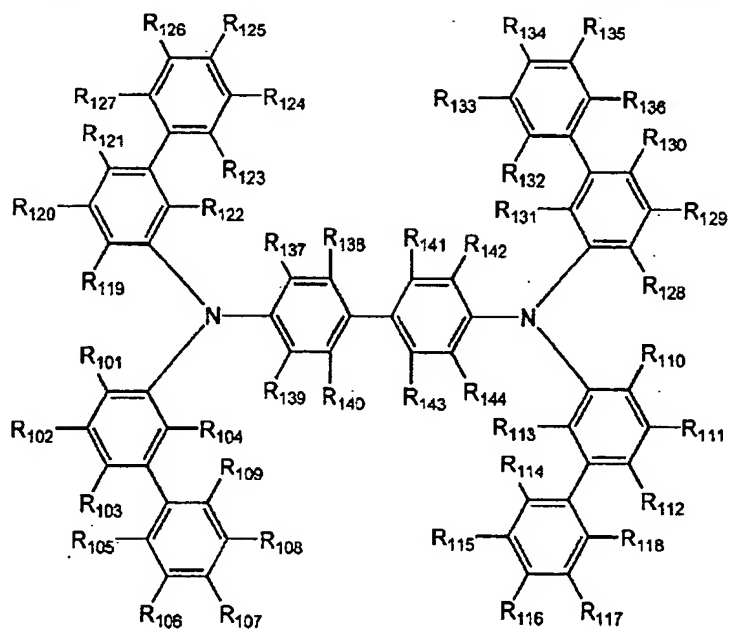
であることを意味している。

[0250]

[0250]

【化 60】

[Chemical Formula 60]



[0251]

[0251]

【化 61】

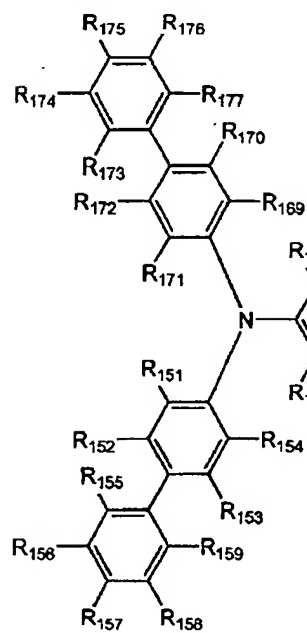
[Chemical Formula 61]

化 6 1

化合物 No.	$R_{101} \sim R_{104}$	$R_{105} \sim R_{109}$	$R_{110} \sim R_{113}$	$R_{114} \sim R_{118}$	$R_{119} \sim R_{123}$	$R_{123} \sim R_{127}$	$R_{128} \sim R_{131}$	$R_{132} \sim R_{136}$	$R_{137} \sim R_{144}$
I-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H
I-2	H	$R_{106} = CH_3$	H	$R_{117} = CH_3$	H	$R_{123} = CH_3$	H	$R_{136} = CH_3$	H
I-3	H	$R_{107} = CH_3$	H	$R_{118} = CH_3$	H	$R_{125} = CH_3$	H	$R_{134} = CH_3$	H
I-4	H	$R_{107} = Ph$	H	$R_{116} = Ph$	H	$R_{125} = Ph$	H	$R_{134} = Ph$	H
I-5	H	$R_{107} = OPh$	H	$R_{116} = OPh$	H	$R_{125} = OPh$	H	$R_{134} = OPh$	H
I-6	H	$R_{107} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{116} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{125} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{134} = N(C_2H_5)_2$	H
I-7	$R_{102} = Ph$	H	$R_{111} = Ph$	H	$R_{120} = Ph$	H	$R_{129} = Ph$	H	H
I-8	$R_{102} = OPh$	H	$R_{111} = OPh$	H	$R_{120} = OPh$	H	$R_{129} = OPh$	H	H
I-9	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{137} = R_{142} = CH_3$
I-10	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{140} = R_{143} = CH_3$
I-11	$R_{102} = Ph$	$R_{107} = Ph$	$R_{111} = Ph$	$R_{116} = Ph$	$R_{120} = Ph$	$R_{125} = Ph$	$R_{129} = Ph$	$R_{134} = Ph$	H
I-12	H	$R_{106} = CH_3$	H	$R_{116} = CH_3$	H	$R_{126} = CH_3$	H	$R_{134} = CH_3$	H
I-13	H	$R_{106} = Ph$	H	$R_{117} = Ph$	H	$R_{128} = Ph$	H	$R_{136} = Ph$	H

[0252]

[化 62]

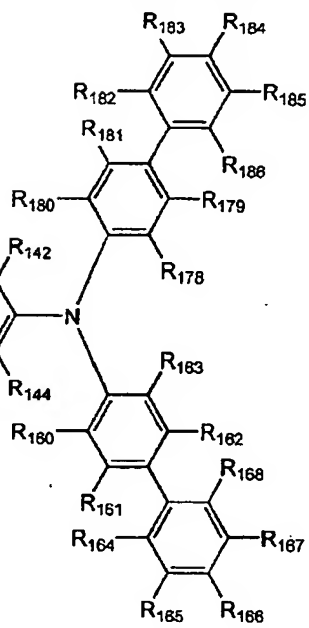


[0253]

[化 63]

[0252]

[Chemical Formula 62]



[0253]

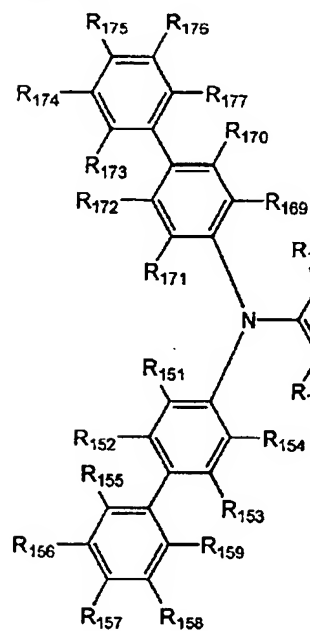
[Chemical Formula 63]

化 6 3

化合物 No.	$R_{151} \sim R_{154}$	$R_{155} \sim R_{159}$	$R_{160} \sim R_{163}$	$R_{164} \sim R_{168}$	$R_{169} \sim R_{172}$	$R_{173} \sim R_{177}$	$R_{178} \sim R_{181}$	$R_{182} \sim R_{186}$	$R_{187} \sim R_{194}$
II-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H
II-2	H	$R_{156} = CH_3$	H	$R_{165} = CH_3$	H	$R_{174} = CH_3$	H	$R_{183} = CH_3$	H
II-3	H	$R_{157} = CH_3$	H	$R_{166} = CH_3$	H	$R_{175} = CH_3$	H	$R_{184} = CH_3$	H
II-4	H	$R_{157} = Ph$	H	$R_{166} = Ph$	H	$R_{176} = Ph$	H	$R_{184} = Ph$	H
II-5	H	$R_{157} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{166} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{175} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{184} = N(C_2H_5)_2$	H
II-6	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{137} = R_{142} = CH_3$
II-7	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{138} = R_{143} = OCH_3$
II-8	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{140} = R_{143} = CH_3$
II-9	H	$R_{157} = CH_3$	H	$R_{165} = CH_3$	H	$R_{176} = CH_3$	H	$R_{183} = CH_3$	H
II-10	H	$R_{156} = R_{158} = CH_3$	H	H	H	$R_{174} = R_{176} = CH_3$	H	H	H

[0254]

[化 64]

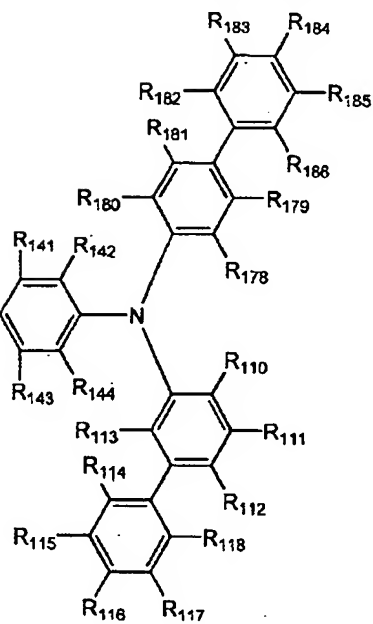


[0255]

[化 65]

[0254]

[Chemical Formula 64]



[0255]

[Chemical Formula 65]

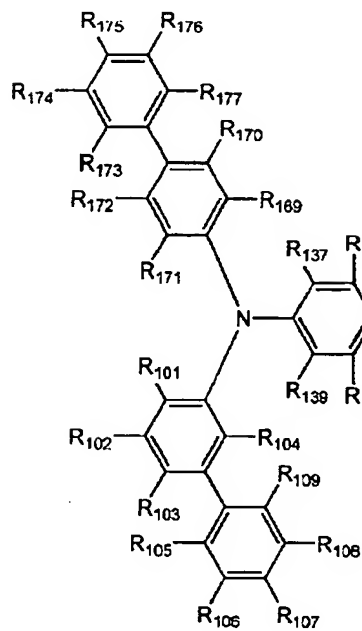
## 化 6 5

化合物 No.	$R_{165} \sim R_{184}$	$R_{186} \sim R_{190}$	$R_{110} \sim R_{113}$	$R_{114} \sim R_{118}$	$R_{169} \sim R_{172}$	$R_{173} \sim R_{177}$	$R_{178} \sim R_{181}$	$R_{182} \sim R_{186}$	$R_{137} \sim R_{144}$
III-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H
III-2	H	$R_{188} = CH_3$	H	$R_{117} = CH_3$	H	$R_{176} = CH_3$	H	$R_{183} = CH_3$	H
III-3	H	$R_{187} = CH_3$	H	$R_{116} = CH_3$	H	$R_{175} = CH_3$	H	$R_{184} = CH_3$	H
III-4	H	$R_{158} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H	$R_{117} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H	$R_{176} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H	$R_{183} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H
III-5	H	$R_{158} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{117} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{176} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{183} = N(C_2H_5)_2$	H
III-6	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{137} = R_{143} = CH_3$
III-7	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{138} = R_{144} = CH_3$
III-8	H	$R_{187} = CH_3$	H	$R_{118} = CH_3$	H	$R_{174} = CH_3$	H	$R_{185} = CH_3$	H
III-9	H	$R_{187} = CH_3$	H	$R_{117} = CH_3$	H	$R_{173} = CH_3$	H	$R_{185} = CH_3$	H
III-10	H	H	$R_{111} = Ph$	H	H	H	H	H	H
III-11	H	H	$R_{111} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H	H	H	H	H	H



[0256]

[化 66]

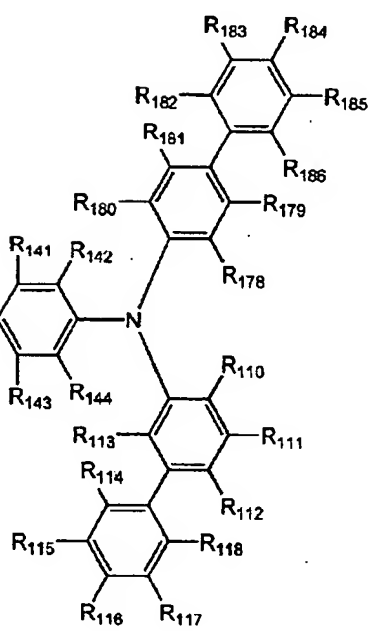


[0257]

[化 67]

[0256]

[Chemical Formula 66]



[0257]

[Chemical Formula 67]

化 6 7

化合物 No.	$R_{101} \sim R_{104}$	$R_{105} \sim R_{109}$	$R_{110} \sim R_{113}$	$R_{114} \sim R_{118}$	$R_{119} \sim R_{122}$	$R_{123} \sim R_{127}$	$R_{128} \sim R_{131}$	$R_{132} \sim R_{136}$	$R_{137} \sim R_{144}$
IV-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H
IV-2	H	$R_{106} = \text{CH}_3$	H	$R_{117} = \text{CH}_3$	H	$R_{176} = \text{CH}_3$	H	$R_{183} = \text{CH}_3$	H
IV-3	H	$R_{107} = \text{CH}_3$	H	$R_{116} = \text{CH}_3$	H	$R_{175} = \text{CH}_3$	H	$R_{184} = \text{CH}_3$	H
IV-4	H	$R_{106} = \text{---} \text{C}_6\text{H}_4 \text{---} \text{CH}_3$	H	$R_{117} = \text{---} \text{C}_6\text{H}_4 \text{---} \text{CH}_3$	H	$R_{176} = \text{---} \text{C}_6\text{H}_4 \text{---} \text{CH}_3$	H	$R_{183} = \text{---} \text{C}_6\text{H}_4 \text{---} \text{CH}_3$	H
IV-5	H	$R_{106} = \text{N}(\text{C}_2\text{H}_5)_2$	H	$R_{117} = \text{N}(\text{C}_2\text{H}_5)_2$	H	$R_{176} = \text{N}(\text{C}_2\text{H}_5)_2$	H	$R_{183} = \text{N}(\text{C}_2\text{H}_5)_2$	H
IV-6	H	$R_{107} = \text{Ph}$	H	$R_{116} = \text{Ph}$	H	$R_{175} = \text{Ph}$	H	$R_{184} = \text{Ph}$	H
IV-7	$R_{102} = \text{CH}_3$	H	$R_{111} = \text{CH}_3$	H	H	H	H	H	H
IV-8	$R_{102} = \text{Ph}$	H	$R_{111} = \text{Ph}$	H	H	H	H	H	H
IV-9	$R_{102} = \text{OPh}$	H	$R_{111} = \text{OPh}$	H	H	H	H	H	H
IV-10	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{138} = R_{141} = \text{CH}_3$
IV-11	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{138} = R_{141} = \text{OCH}_3$
IV-12	H	$R_{106} = \text{CH}_3$	H	$R_{117} = \text{CH}_3$	H	$R_{176} = \text{CH}_3$	H	$R_{184} = \text{CH}_3$	H
IV-13	H	$R_{106} = \text{CH}_3$	H	$R_{116} = \text{CH}_3$	H	$R_{175} = \text{CH}_3$	H	$R_{184} = \text{CH}_3$	H
IV-14	H	H	H	H	H	$R_{176} = \text{N}(\text{CH}_3)_2$	H	$R_{184} = \text{N}(\text{CH}_3)_2$	H

**JP2000156290A**

**2000-6-6**



**【0258】**

**[0258]**

**【化 68】**

**[Chemical Formula 68]**

化 6 8

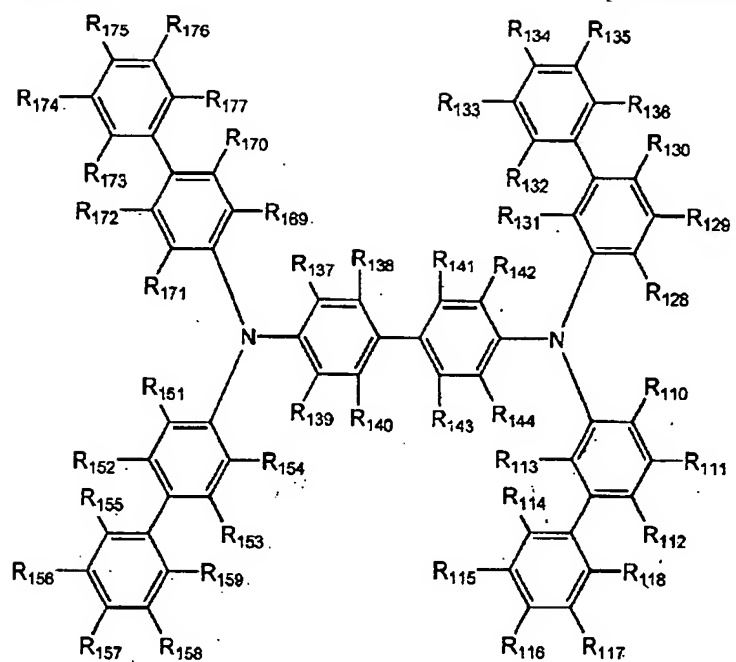
化合物 No.	$R_{101} \sim R_{104}$	$R_{105} \sim R_{109}$	$R_{110} \sim R_{113}$	$R_{114} \sim R_{118}$	$R_{119} \sim R_{122}$	$R_{123} \sim R_{127}$	$R_{128} \sim R_{131}$	$R_{132} \sim R_{136}$	$R_{137} \sim R_{144}$
IV-15	H	H	H	H	H	$R_{178} = CH_3$	H	$R_{184} = CH_3$	H
IV-16	H	H	H	H	H	$R_{174} = CH_3$	H	$R_{183} = CH_3$	H
IV-17	H	$R_{106} = CH_3$	H	$R_{115} = CH_3$	H	H	H	H	H
IV-18	H	$R_{107} = CH_3$	H	$R_{117} = CH_3$	H	H	H	H	H
IV-19	H	$R_{108} = Ph$	H	$R_{115} = Ph$	H	H	H	H	H
IV-20	H	H	H	H	H	$R_{176} = Ph$	H	$R_{184} = Ph$	H
IV-21	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{137} = R_{142} = CH_3$
IV-22	H	H	H	H	H	$R_{175} = $ 	H	$R_{184} = $ 	H

[0259]

[0259]

[化 69]

[Chemical Formula 69]



[0260]

[0260]

[化 70]

[Chemical Formula 70]

化70

化合物 No.	$R_{161} \sim R_{164}$	$R_{165} \sim R_{169}$	$R_{170} \sim R_{173}$	$R_{174} \sim R_{176}$	$R_{177} \sim R_{179}$	$R_{180} \sim R_{182}$	$R_{183} \sim R_{185}$	$R_{186} \sim R_{188}$
V-1	H	H	H	H	H	H	H	H
V-2	H	$R_{168} = CH_3$	H	$R_{176} = CH_3$	H	$R_{185} = CH_3$	H	H
V-3	H	$R_{167} = CH_3$	H	$R_{175} = CH_3$	H	$R_{184} = CH_3$	H	H
V-4	H	$R_{158} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H	$R_{117} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H	$R_{176} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	$R_{135} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H
V-5	H	$R_{166} = OPh$	H	$R_{117} = OPh$	H	$R_{176} = OPh$	$R_{135} = OPh$	H
V-6	H	$R_{166} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{117} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{176} = N(C_2H_5)_2$	$R_{135} = N(C_2H_5)_2$	H
V-7	H	$R_{167} = Ph$	H	$R_{116} = Ph$	H	$R_{176} = Ph$	$R_{134} = Ph$	H
V-8	H	$R_{167} = CH_3$	H	$R_{116} = CH_3$	H	$R_{176} = CH_3$	$R_{135} = CH_3$	H
V-9	H	$R_{167} = CH_3$	H	$R_{117} = CH_3$	H	$R_{176} = CH_3$	$R_{135} = CH_3$	H
V-10	H	H	$R_{111} = CH_3$	H	H	$R_{129} = CH_3$	H	H
V-11	H	H	$R_{111} = Ph$	H	H	$R_{129} = Ph$	H	H
V-12	H	H	H	H	H	H	H	$R_{138} = R_{141} = CH_3$
V-13	H	$R_{167} = CH_3$	H	H	$R_{175} = CH_3$	H	H	H

**JP2000156290A**

**2000-6-6**

**【0261】**

**[0261]**

**【化 71】**

**[Chemical Formula 71]**

化 7 1

化合物 No.	$R_{131} \sim R_{154}$	$R_{155} \sim R_{159}$	$R_{110} \sim R_{113}$	$R_{114} \sim R_{118}$	$R_{169} \sim R_{172}$	$R_{173} \sim R_{177}$	$R_{128} \sim R_{131}$	$R_{132} \sim R_{136}$	$R_{137} \sim R_{144}$
V-14	H	$R_{156} = CH_3$	H	H	H	$R_{174} = CH_3$	H	H	H
V-15	H	$R_{157} = N(CH_3)_2$	H	H	H	$R_{175} = N(CH_3)_2$	H	H	H
V-16	H	H	H	$R_{117} = Ph$	H	H	H	$R_{133} = Ph$	H

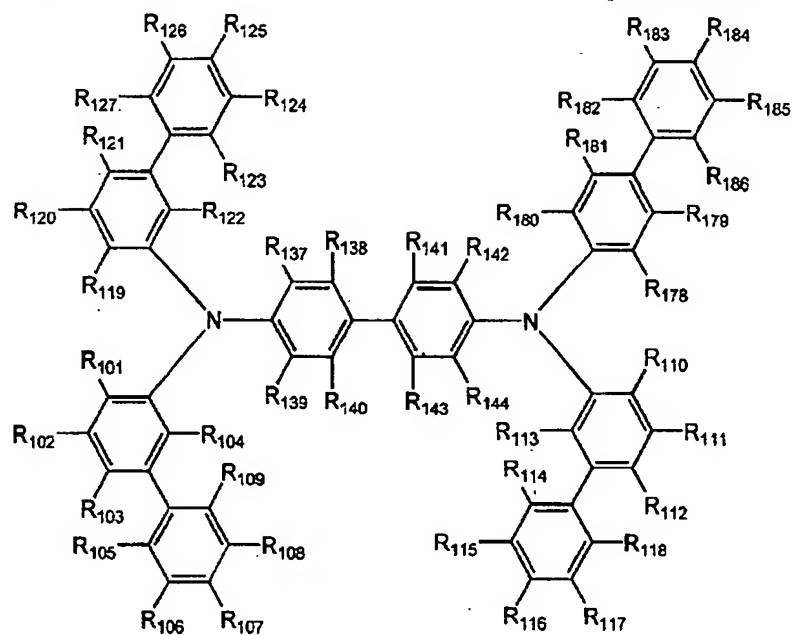


[0262]

[0262]

[化 72]

[Chemical Formula 72]



[0263]

[0263]

[化 73]

[Chemical Formula 73]

## 化 7 3

化合物 No.	$R_{101} \sim R_{104}$	$R_{105} \sim R_{109}$	$R_{110} \sim R_{113}$	$R_{114} \sim R_{118}$	$R_{119} \sim R_{122}$	$R_{123} \sim R_{127}$	$R_{128} \sim R_{131}$	$R_{132} \sim R_{136}$	$R_{137} \sim R_{144}$
VI-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H
VI-2	H	$R_{106} = CH_3$	H	$R_{117} = CH_3$	H	$R_{126} = CH_3$	H	$R_{135} = CH_3$	H
VI-3	H	$R_{107} = CH_3$	H	$R_{116} = CH_3$	H	$R_{125} = CH_3$	H	$R_{134} = CH_3$	H
VI-4	H	$R_{106} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H	$R_{117} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H	$R_{126} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H	$R_{135} = \text{---} \langle \text{C}_6\text{H}_4 \rangle \text{---} CH_3$	H
VI-5	H	$R_{106} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{117} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{126} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{135} = N(C_2H_5)_2$	H
VI-6	H	$R_{107} = Ph$	H	$R_{116} = Ph$	H	$R_{125} = Ph$	H	$R_{134} = Ph$	H
VI-7	$R_{102} = CH_3$	H	$R_{111} = CH_3$	H	$R_{120} = CH_3$	H	H	H	H
VI-8	$R_{103} = Ph$	H	$R_{111} = Ph$	H	$R_{120} = Ph$	H	H	H	H
VI-9	H	H	H	H	H	H	H	$R_{138} = R_{141} = CH_3$	
VI-10	H	H	H	H	H	H	H	$R_{136} = R_{141} = OCH_3$	
VI-11	H	$R_{106} = CH_3$	H	$R_{117} = CH_3$	H	$R_{126} = CH_3$	H	$R_{135} = CH_3$	H
VI-12	H	$R_{106} = CH_3$	H	$R_{116} = CH_3$	H	$R_{125} = CH_3$	H	$R_{134} = CH_3$	H
VI-13	H	H	H	H	H	H	H	$R_{138} = CH_3$	H
VI-14	H	H	H	H	H	H	H	$R_{136} = CH_3$	H

**JP2000156290A**

**2000-6-6**

**【0264】**

**[0264]**

**【化 74】**

**[Chemical Formula 74]**

化 7 4

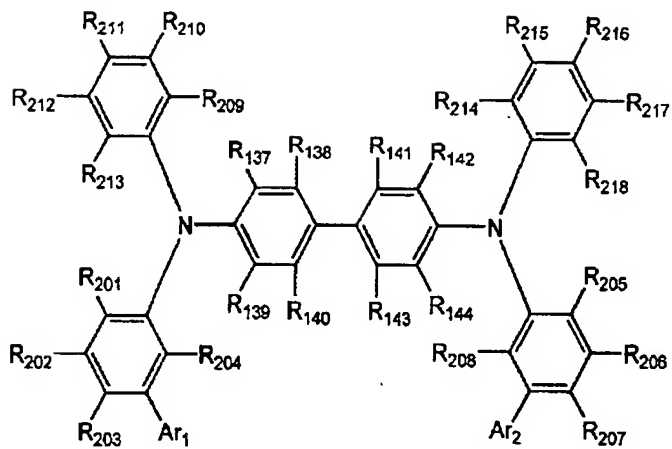
化合物 No.	$R_{101} \sim R_{104}$	$R_{105} \sim R_{108}$	$R_{109} \sim R_{112}$	$R_{113} \sim R_{116}$	$R_{117} \sim R_{120}$	$R_{121} \sim R_{124}$	$R_{125} \sim R_{128}$	$R_{129} \sim R_{132}$	$R_{133} \sim R_{136}$	$R_{137} \sim R_{140}$	$R_{141} \sim R_{144}$
VI-15	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{134} = Ph$	H	H
VI-16	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{134} = N(CH_3)_2$	H	H
VI-17	H	$R_{106} = Ph$	H	$R_{115} = Ph$	H	$R_{124} = Ph$	H	H	H	H	H
VI-18	H	$R_{106} = CH_3$	H	$R_{115} = CH_3$	H	$R_{124} = CH_3$	H	H	H	H	H
VI-19	H	$R_{107} = CH_3$	H	$R_{116} = CH_3$	H	$R_{125} = CH_3$	H	H	H	H	H

【0265】

[0265]

【化 75】

[Chemical Formula 75]





【0266】

[0266]

【化 76】

[Chemical Formula 76]

化 7 6

化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>205</sub> ~R <sub>208</sub>	R <sub>209</sub> ~R <sub>213</sub>	R <sub>214</sub> ~R <sub>218</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
VII-1	Ph	Ph	H	H	H	H	H
VII-2	Ph	Ph	H	H	R <sub>210</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>215</sub> =CH <sub>3</sub>	H
VII-3	Ph	Ph	H	H	R <sub>211</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>216</sub> =CH <sub>3</sub>	H
VII-4	Ph	Ph	H	H	R <sub>211</sub> =Ph	H	H
VII-5	Ph	Ph	H	H	R <sub>210</sub> = 	R <sub>215</sub> = 	H
VII-6	Ph	Ph	R <sub>201</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>206</sub> =CH <sub>3</sub>	H	H	H
VII-7	Ph	Ph	H	H	R <sub>211</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>215</sub> =CH <sub>3</sub>	H
VII-8	Ph	Ph	R <sub>201</sub> =Ph	R <sub>206</sub> =Ph	H	H	H
VII-9	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>138</sub> =R <sub>143</sub> =CH <sub>3</sub>
VII-10	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>138</sub> =R <sub>143</sub> =OCH <sub>3</sub>

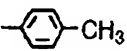
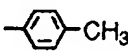
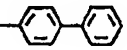
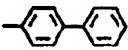


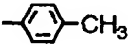






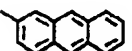
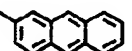
【0267】

【化 77】

[0267]

[Chemical Formula 77]

化 7 7

化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>205</sub> ~R <sub>208</sub>	R <sub>209</sub> ~R <sub>213</sub>	R <sub>214</sub> ~R <sub>218</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
VII-11			H	H	H	H	H
VII-12			H	H	H	H	H
VII-13			H	H	H	H	H
VII-14	Ph		H	H	H	H	H
VII-15			H	H	H	H	H
VII-16			H	H	H	H	H
VII-17			H	H	H	H	H
VII-18			H	H	H	H	H

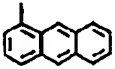
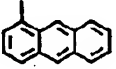
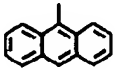
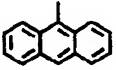
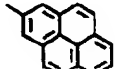
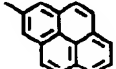
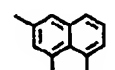
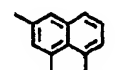
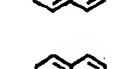
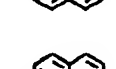
[0268]

[化 78]

[0268]

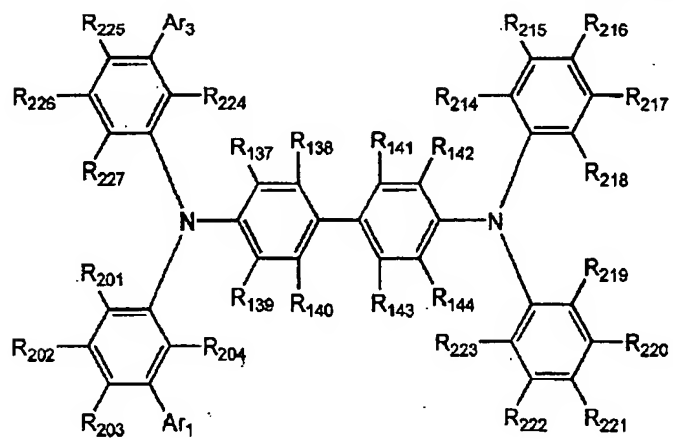
[Chemical Formula 78]

化 7 8

化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>205</sub> ~R <sub>208</sub>	R <sub>209</sub> ~R <sub>213</sub>	R <sub>214</sub> ~R <sub>218</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
VII-19			H	H	H	H	H
VII-20			H	H	H	H	H
VII-21			H	H	H	H	H
VII-22			H	H	H	H	H
VII-23			H	H	H	H	H

【0269】

【化 79】



【0269】

【Chemical Formula 79】

【0270】


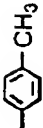
【化 80】

【0270】

【Chemical Formula 80】



化 8 0

化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>3</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>219</sub> ~R <sub>223</sub>	R <sub>224</sub> ~R <sub>227</sub>	R <sub>214</sub> ~R <sub>218</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
VIII-1	Ph	Ph	H	H	H	H	H
VIII-2	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>137</sub> =R <sub>142</sub> =Cl
VIII-3	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>138</sub> =R <sub>143</sub> =CH <sub>3</sub>
VIII-4	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>137</sub> =R <sub>142</sub> =CH <sub>3</sub>
VIII-5	Ph	Ph	H	R <sub>222</sub> = 	H	R <sub>215</sub> = 	H
VIII-6	Ph	Ph	H	R <sub>222</sub> =OPh	H	R <sub>216</sub> =OPh	H
VIII-7	Ph	Ph	H	R <sub>222</sub> =CH <sub>3</sub>	H	R <sub>216</sub> =CH <sub>3</sub>	H
VIII-8	Ph	Ph	H	R <sub>221</sub> =CH <sub>3</sub>	H	R <sub>216</sub> =CH <sub>3</sub>	H
VIII-9	Ph	Ph	H	R <sub>221</sub> =Ph	H	H	H
VIII-10	Ph	Ph	R <sub>202</sub> =CH <sub>3</sub>	H	R <sub>226</sub> =CH <sub>3</sub>	H	H
VIII-11	Ph	Ph	R <sub>202</sub> =Ph	H	R <sub>226</sub> =Ph	H	H

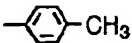
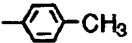
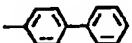
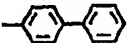







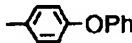
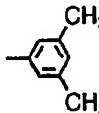
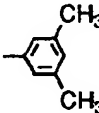
【0271】

【化 81】

【0271】

【Chemical Formula 81】

## 化 8 1

化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>3</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>219</sub> ~R <sub>223</sub>	R <sub>224</sub> ~R <sub>227</sub>	R <sub>214</sub> ~R <sub>218</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
VIII-12			H	H	H	H	H
VIII-13			H	H	H	H	H
VIII-14			H	H	H	H	H
VIII-15			H	H	H	H	H
VIII-16			H	H	H	H	H
VIII-17			H	H	H	H	H
VIII-18			H	H	H	H	H

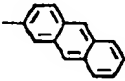
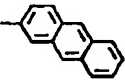
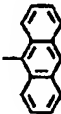
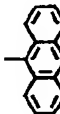
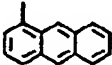
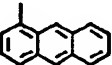


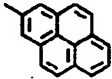
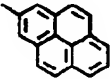
【0272】

【化 82】

[0272]

[Chemical Formula 82]

化 8 2

化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>3</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>219</sub> ~R <sub>223</sub>	R <sub>224</sub> ~R <sub>227</sub>	R <sub>214</sub> ~R <sub>218</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
VIII-19			H	H	H	H	H
VIII-20			H	H	H	H	H
VIII-21			H	H	H	H	H
VIII-22			H	H	H	H	H
VIII-23			H	H	H	H	H

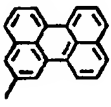
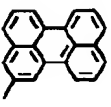
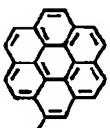
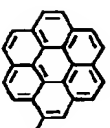
【0273】

【化 83】

[0273]

[Chemical Formula 83]

化 8 3

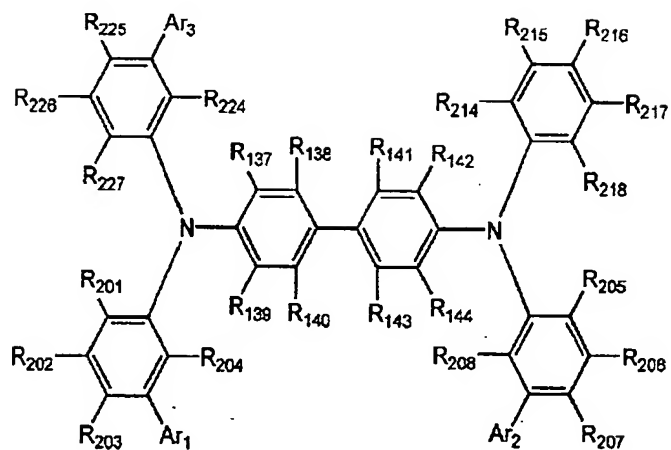
化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>3</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>219</sub> ~R <sub>223</sub>	R <sub>224</sub> ~R <sub>227</sub>	R <sub>241</sub> ~R <sub>248</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
VIII-24			H	H	H	H	H
VIII-25			H	H	H	H	H

【0274】

【化 84】

[0274]

[Chemical Formula 84]



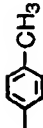





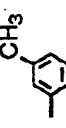
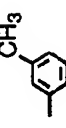
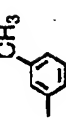
[0275]

[化 85]

[0275]

[Chemical Formula 85]

## 化 8 5

化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>205</sub> ~R <sub>208</sub>	R <sub>224</sub> ~R <sub>227</sub>	R <sub>214</sub> ~R <sub>218</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
IX-1	Ph	Ph	Ph	H	H	H	H	H
IX-2	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>218</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>137</sub> =R <sub>143</sub> =CH <sub>3</sub>
IX-3	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>218</sub> =CH <sub>3</sub>	H
IX-4	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>218</sub> =OPh	H
IX-5	Ph	Ph	Ph	R <sub>201</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>205</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>224</sub> =CH <sub>3</sub>	H	H
IX-6	Ph	Ph	Ph	R <sub>201</sub> =Ph	R <sub>205</sub> =Ph	R <sub>224</sub> =Ph	H	H
IX-7	Ph	Ph	Ph	R <sub>201</sub> =OPh	R <sub>205</sub> =OPh	R <sub>224</sub> =OPh	H	H
IX-8				H	H	H	H	H
IX-9				H	H	H	H	H
IX-10				H	H	H	H	H

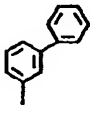
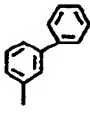
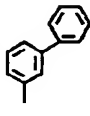

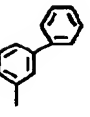

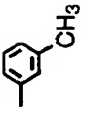
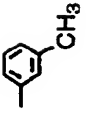

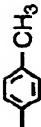


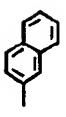
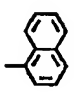
[0276]

[0276]

[化 86]

[Chemical Formula 86]

化 8 6

化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>205</sub> ~R <sub>208</sub>	R <sub>224</sub> ~R <sub>227</sub>	R <sub>214</sub> ~R <sub>218</sub>	R <sub>127</sub> ~R <sub>144</sub>
IX-11				H	H	H	H	H
IX-12		Ph	Ph	H	H	H	H	H
IX-13	Ph			H	H	H	H	H
IX-14			Ph	H	H	H	H	H
IX-15		Ph		H	H	H	H	H
IX-16			Ph	H	H	H	H	H
IX-17		Ph	Ph	H	H	H	H	H
IX-18		Ph	Ph	H	H	H	H	H

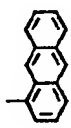
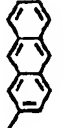
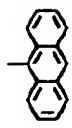
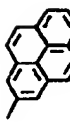
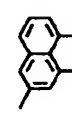
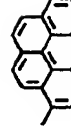
[0277]

[0277]

[化 87]

[Chemical Formula 87]

化 8 7

化合物 No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	R <sub>201</sub> ~R <sub>204</sub>	R <sub>205</sub> ~R <sub>208</sub>	R <sub>209</sub> ~R <sub>237</sub>	R <sub>241</sub> ~R <sub>243</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
IX-19		Ph	Ph	H	H	H	H	H
IX-20		Ph	Ph	H	H	H	H	H
IX-21		Ph	Ph	H	H	H	H	H
IX-22		Ph	Ph	H	H	H	H	H
IX-23		Ph	Ph	H	H	H	H	H
IX-24		Ph	Ph	H	H	H	H	H

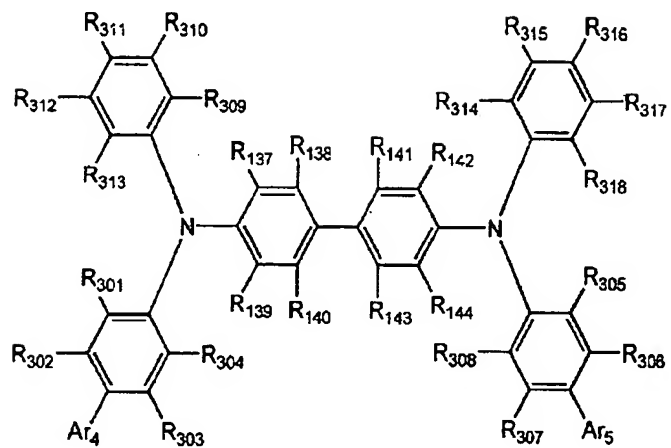
[0278]

[化 88]

[0278]

[Chemical Formula 88]





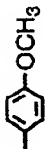

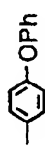
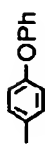
【0279】

【化 89】

[0279]

[Chemical Formula 89]

化 8 9

化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	R <sub>901</sub> ~R <sub>904</sub>	R <sub>906</sub> ~R <sub>908</sub>	R <sub>909</sub> ~R <sub>913</sub>	R <sub>914</sub> ~R <sub>918</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
X-1	Ph	Ph	H	H	H	H	H
X-2	Ph	Ph	H	H	R <sub>910</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>915</sub> =CH <sub>3</sub>	H
X-3	Ph	Ph	H	H	R <sub>911</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>916</sub> =CH <sub>3</sub>	H
X-4	Ph	Ph	H	H	R <sub>911</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>916</sub> =CH <sub>3</sub>	H
X-5	Ph	Ph	H	H	R <sub>911</sub> =OCH <sub>3</sub>	R <sub>916</sub> =OCH <sub>3</sub>	H
X-6	Ph	Ph	H	H	R <sub>911</sub> =Ph	H	H
X-7	Ph	Ph	H	H	R <sub>911</sub> =OPh	R <sub>916</sub> =OPh	H
X-8	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>138</sub> =R <sub>143</sub> =CH <sub>3</sub>
X-9	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>137</sub> =R <sub>142</sub> =CH <sub>3</sub>
X-10			H	H	H	H	H
X-11			H	H	H	H	H

【0280】

【化 90】

[0280]

[Chemical Formula 90]

化 9 0

化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>6</sub>	R <sub>301</sub> ~R <sub>304</sub>	R <sub>305</sub> ~R <sub>308</sub>	R <sub>309</sub> ~R <sub>313</sub>	R <sub>314</sub> ~R <sub>318</sub>	R <sub>319</sub> ~R <sub>323</sub>
X-12			H	H	H	H	H
X-13			H	H	H	H	H
X-14			H	H	H	H	H
X-15			H	H	H	H	H
X-16			H	H	H	H	H
X-17			H	H	H	H	H



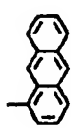



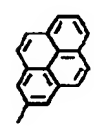
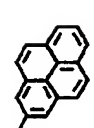
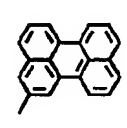
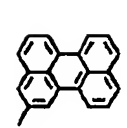
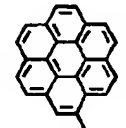
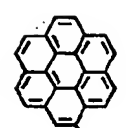
【0281】

【化 91】

【0281】

【Chemical Formula 91】

化 9 1

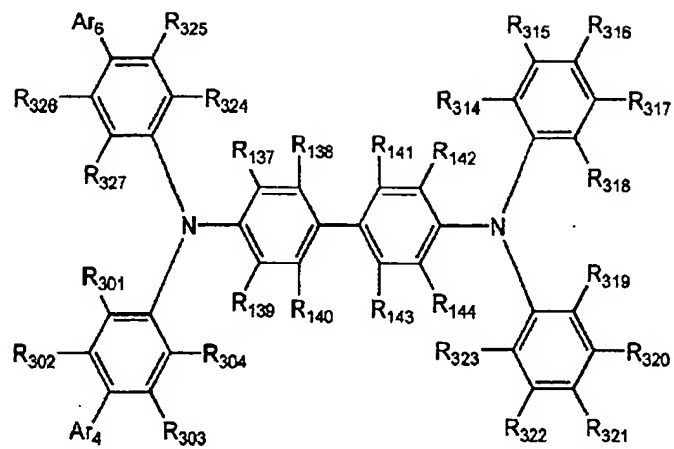
化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	R <sub>301</sub> ~R <sub>304</sub>	R <sub>305</sub> ~R <sub>308</sub>	R <sub>309</sub> ~R <sub>313</sub>	R <sub>314</sub> ~R <sub>318</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
X-18	Ph	Ph	H	H	R <sub>311</sub> =  -CH <sub>3</sub>	R <sub>316</sub> =  -CH <sub>3</sub>	H
X-19			H	H	H	H	H
X-20			H	H	H	H	H
X-21			H	H	H	H	H
X-22			H	H	H	H	H
X-23			H	H	H	H	H

【0282】

【化 92】

[0282]

[Chemical Formula 92]






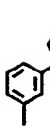
【0283】

【化 93】

[0283]

[Chemical Formula 93]

## 化 9 3

化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>6</sub>	R <sub>301</sub> ~R <sub>304</sub>	R <sub>319</sub> ~R <sub>323</sub>	R <sub>324</sub> ~R <sub>327</sub>	R <sub>314</sub> ~R <sub>318</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
XI-1	Ph	Ph	H	H	H	H	H
XI-2	Ph	Ph	H	R <sub>320</sub> =CH <sub>3</sub>	H	R <sub>317</sub> =CH <sub>3</sub>	H
XI-3	Ph	Ph	H	R <sub>321</sub> =CH <sub>3</sub>	H	R <sub>316</sub> =CH <sub>3</sub>	H
XI-4	Ph	Ph	H	R <sub>321</sub> =CH <sub>3</sub>	H	R <sub>317</sub> =CH <sub>3</sub>	H
XI-5	Ph	Ph	H	R <sub>321</sub> =Ph	H	H	H
XI-6	Ph	Ph	H	R <sub>321</sub> =OPh	H	R <sub>316</sub> =OPh	H
XI-7	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>137</sub> =R <sub>142</sub> =CH <sub>3</sub>
XI-8	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>138</sub> =R <sub>143</sub> =CH <sub>3</sub>
XI-9	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>137</sub> =R <sub>142</sub> =OCH <sub>3</sub>
XI-10			H	H	H	H	H
XI-11			H	H	H	H	H

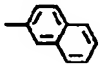
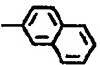



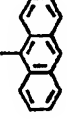
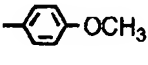
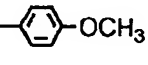
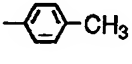
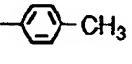
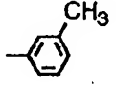
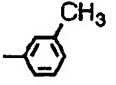
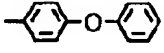
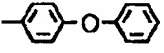
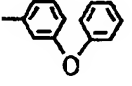
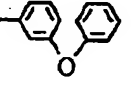
[0284]

[0284]

[化 94]

[Chemical Formula 94]

化 9 4

化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>6</sub>	R <sub>301</sub> ~R <sub>304</sub>	R <sub>319</sub> ~R <sub>323</sub>	R <sub>324</sub> ~R <sub>327</sub>	R <sub>314</sub> ~R <sub>318</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
XI-12			H	H	H	H	H
XI-13			H	H	H	H	H
XI-14			H	H	H	H	H
XI-15			H	H	H	H	H
XI-16			H	H	H	H	H
XI-17			H	H	H	H	H
XI-18			H	H	H	H	H
XI-19			H	H	H	H	H

【0285】

【化 95】

[0285]

[Chemical Formula 95]

化 9 5

化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>6</sub>	R <sub>901</sub> ~R <sub>904</sub>	R <sub>919</sub> ~R <sub>923</sub>	R <sub>924</sub> ~R <sub>927</sub>	R <sub>931</sub> ~R <sub>935</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
XI-20			H	H	H	H	H
XI-21	Ph	Ph	H	R <sub>321</sub> =	H	R <sub>316</sub> =	H
XI-22			H	H	H	H	H
XI-23			H	H	H	H	H
XI-24			H	H	H	H	H
XI-25			H	H	H	H	H
XI-26			H	H	H	H	H

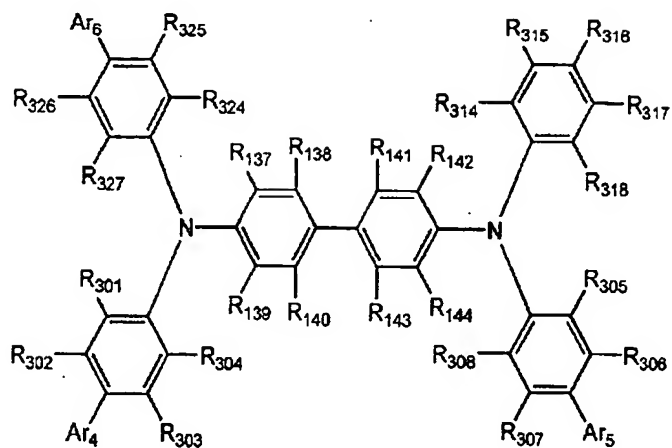
【0286】

【化 96】

【0286】

【Chemical Formula 96】





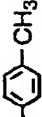
[0287]

[化 97]

[0287]

[Chemical Formula 97]

化 9 7

化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>6</sub>	Ar <sub>6</sub>	R <sub>301</sub> ~R <sub>304</sub>	R <sub>305</sub> ~R <sub>308</sub>	R <sub>324</sub> ~R <sub>327</sub>	R <sub>314</sub> ~R <sub>318</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
XII-1	Ph	Ph	Ph	H	H	H	H	H
XII-2	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>315</sub> =CH <sub>3</sub>	H
XII-3	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>316</sub> =CH <sub>3</sub>	H
XII-4	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>316</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>137</sub> =R <sub>142</sub> =CH <sub>3</sub>
XII-5	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>316</sub> =OCH <sub>3</sub>	H
XII-6	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>316</sub> =OCH <sub>3</sub>	H
XII-7	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>316</sub> =OPh	H
XII-8	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>316</sub> =OPh	H
XII-9	Ph	Ph	Ph	H	H	H	R <sub>316</sub> = 	H
XII-10	Ph	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>138</sub> =R <sub>143</sub> =CH <sub>3</sub>
XII-11	Ph	Ph	Ph	H	H	H	H	R <sub>137</sub> =R <sub>143</sub> =CH <sub>3</sub>

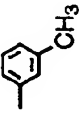
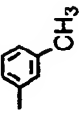
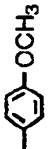
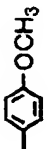
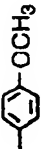
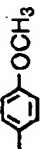
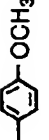
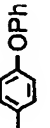
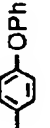
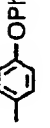
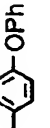
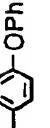
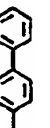

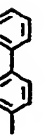
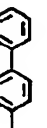

【0288】

【化 98】

【0288】

[Chemical Formula 98]

## 化 9 8

化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>6</sub>	R <sub>301</sub> ~R <sub>304</sub>	R <sub>305</sub> ~R <sub>308</sub>	R <sub>324</sub> ~R <sub>327</sub>	R <sub>314</sub> ~R <sub>318</sub>	R <sub>137</sub> ~R <sub>144</sub>
XII-12			Ph	H	H	H	H	H
XII-13			Ph	H	H	H	H	H
XII-14				H	H	H	H	H
XII-15				H	H	H	H	H
XII-16			Ph	H	H	H	H	H
XII-17				H	H	H	H	H
XII-18			Ph	H	H	H	H	H

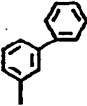
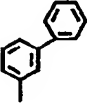
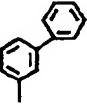
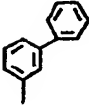
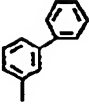
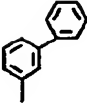
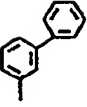
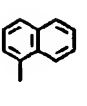
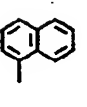
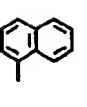
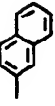
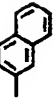
[0289]

[化 99]

[0289]

[Chemical Formula 99]

## 化 9 9

化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>6</sub>	Ar <sub>6</sub>	R <sub>301</sub> ~R <sub>304</sub>	R <sub>305</sub> ~R <sub>308</sub>	R <sub>309</sub> ~R <sub>312</sub>	R <sub>313</sub> ~R <sub>316</sub>	R <sub>317</sub> ~R <sub>320</sub>	R <sub>321</sub> ~R <sub>324</sub>	R <sub>325</sub> ~R <sub>328</sub>	R <sub>329</sub> ~R <sub>332</sub>
XII-19				H	H	H	H	H	H	H	H
XII-20			Ph	H	H	H	H	H	H	H	H
XII-21		Ph		H	H	H	H	H	H	H	H
XII-22				H	H	H	H	H	H	H	H
XII-23			Ph	H	H	H	H	H	H	H	H

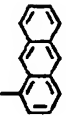



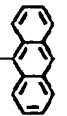
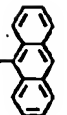
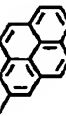
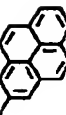
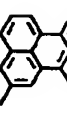
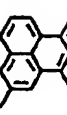


【0290】

【化 100】

【0290】

【Chemical Formula 100】

化100

化合物 No.	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	Ar <sub>6</sub>	R <sub>901</sub> ~R <sub>304</sub>	R <sub>905</sub> ~R <sub>908</sub>	R <sub>924</sub> ~R <sub>927</sub>	R <sub>314</sub> ~R <sub>318</sub>	R <sub>187</sub> ~R <sub>144</sub>
XII-24			Ph	H	H	H	H	H
XII-25			Ph	H	H	H	H	H
XII-26			Ph	H	H	H	H	H
XII-27			Ph	H	H	H	H	H
XII-28			Ph	H	H	H	H	H
XII-29			Ph	H	H	H	H	H

【0291】

テトラアリールベンジジン誘導体は 1 種のみを用いても 2 種以上を併用してもよい。

【0292】

テトラアリールベンジジン誘導体は、Jean Piccard, Herr. Chim. Acta., 7,789(1924)、Jean

【0291】

tetra aryl benzidine derivative making use of only 1 kind and it may jointly use 2 kinds or more.

【0292】

Jean Piccard, Herr. Chim. Acta., 7,789 (1924), Jean Piccard, Journal of the American Chemical Society (0002 - 7863,

Piccard, J. Am. Chem. Soc., 48, 2878(1926) 等に記載の方法に従って、あるいは準じて合成することができ、特開平 8-48655 号公報等に従って合成すればよい。

具体的には、目的とする化合物に応じて、ジ(ビフェニル)アミン化合物とジヨードビフェニル化合物、あるいは N,N'-ジフェニルベンジン化合物とヨードビフェニル化合物、などの組合せで、銅の存在下で加熱すること(ウルマン反応)によって得られる。

また、バナジウムのトリアルキルホスヒン錯体の存在下でも同様に得ることができる。

【0293】

テトラアリールベンジジン誘導体は、質量分析、赤外吸収スペクトル(IR)、<sup>1</sup>H、<sup>13</sup>C 核磁気共鳴スペクトル(NMR)等によって同定することができる。

【0294】

これらのテトラアリールベンジジン誘導体は、640~2000 程度の分子量をもち、190~300 deg C の高融点、80~200 deg C の高ガラス転移温度を示し、通常の真空蒸着等によって透明で室温以上でも安定なアモルファス状態を形成し、平滑で良好な膜が得られ、しかもそれが長期間に渡って維持される。

なお、これらの化合物の中には融点を示さず、高温においてもアモルファス状態を呈するもの、例えば、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[-4'-(N-フェニル-N-3-メチルフェニルアミノ)ビフェニル-4-イル]ベンジジンなどもある。

従って、バインダー樹脂を用いることなく、それ自体で薄膜化することができる。

【0295】

本発明では、発光層に発光機能を有する化合物である蛍光物質を含有させる。

このような蛍光性物質としては、例えば、特開昭 63-264692 号公報に開示されているような化合物、例えばキノクリドン、ルブレン、スチリル系色素等の化合物が挙げられる。

また、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム等の 8-キノリノールないしその誘導体を配位子とする金属錯体色素などのキノリン誘導体、テトラフェニルブタジエン、アントラセン、ペリレン、コロネ

JACSAT), following to method which is stated in 48 and 2878 (1926) etc, or corresponding, synthesizes tetra aryl benzidine derivative, to be possible, following to Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-48655 disclosure, etc if it should have synthesized.

Concretely, with di (biphenyl ) amine compound and di iodo biphenyl compound、 or N,N'-biphenyl benzene compound and iodo biphenyl compound、 or other combination, it is acquired with thing (Ullmann reaction ) which is heated under existing of copper according to compound which is made the objective.

In addition, it can acquire in same way even under existing of the trialkyl phosphine complex of vanadium.

【0293】

tetra aryl benzidine derivative, mass analysis、 infrared absorption spectrum (IR ), <sup>1</sup>H、<sup>13</sup>C nuclear magnetic resonance spectrum is possible identification with such as (nmr ).

【0294】

These tetra aryl benzidine derivative show high glass transition temperature of high melting point、 80~200 deg C of 190 - 300 deg C with molecular weight of 640 - 2000 extent、 with transparent with such as conventional vacuum vapor deposition stability form amorphous state even with room temperature or higher、 satisfactory film is acquired with smooth、 furthermore that is maintained over long period.

Furthermore、 those which do not show melting point in these compound、 display amorphous state regarding high temperature. There is also for example N,N'-biphenyl-N,N'-bis [-4'-(N-phenyl-N-3-methylphenyl amino) biphenyl-4-yl ] benzidine etc.

Therefore、 without using binder resin、 making thin film it is possible with that itself.

【0295】

With <luminescent layer phosphor> this invention、 phosphor which is a compound which possesses light emission function in luminescent layer is contained.

As this kind of fluorescence substance、 you can list compound、 for example quinacridone、 rubrene、 styryl kind of dye or other compound which is disclosed in for example Japan Unexamined Patent Publication Showa 63-264692 disclosure.

In addition、 you can list metal complex dye or other quinoline derivative、 tetra phenyl butadiene、 anthracene、 perylene、 coronene、 1,2-phthaloperinone derivative etc which designates tris (8-quinolinolato ) aluminum or other

ン、12-フタロペリノン誘導体等が挙げられる。

さらには、特開平 8-12600 号のフェニルアントラセン誘導体、特開平 8-12969 号のテトラアリアルエテン誘導体等も挙げられる。

蛍光性物質は 1 種のみを用いても 2 種以上を併用してもよい。

#### 【0296】

発光層蛍光物質としては、キノリン誘導体が好ましく、さらには 8-キノリノールないしその誘導体を配位子とするアルミニウム錯体が好ましい。

このようなアルミニウム錯体としては、特開昭 63-264692 号、特開平 3-255190 号、特開平 5-70733 号、特開平 5-258859 号、特開平 6-215874 号等に開示されているものを挙げることができる。

#### 【0297】

具体的には、まず、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム、ビス(8-キノリノラト)マグネシウム、ビス(ベンゾ{f}-8-キノリノラト)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノラト)インジウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム、8-キノリノラトリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノラト)ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノラト)カルシウム、5,7-ジクロロ-8-キノリノラトアルミニウム、トリス(5,7-ジブromo-8-ヒドロキシキノリノラト)アルミニウム、ポリ[亜鉛(II)-ビス(8-ヒドロキシ-5-キノリニル)メタン]等がある。

#### 【0298】

また、

8-キノリノールないしその誘導体のほかに他の配位子を有するアルミニウム錯体であってもよく、

このようなものとしては、

ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(フェノラト)アルミニウム(III)、

ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(オルト-クレゾラト)アルミニウム(III)、

ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(メタ-クレゾラト)アルミニウム(III)、

ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(パラ-クレゾラト)アルミニウム(III)、

8-quinolinol or its derivative as ligand.

Furthermore, also tetra aryl ethene derivative etc of phenyl anthracene derivative, Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-12969 number of Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-12600 number is listed.

fluorescence substance making use of only 1 kind and it may jointly use 2 kinds or more.

#### 【0296】

As luminescent layer phosphor, quinoline derivative is desirable, furthermore 8 -quinolinol or the aluminum complex which designates its derivative as ligand is desirable.

As this kind of aluminum complex, those which are disclosed in Japan Unexamined Patent Publication Showa 63- 264692 number, Japan Unexamined Patent Publication Hei 3- 255190 number, Japan Unexamined Patent Publication Hei 5-70733 number, Japan Unexamined Patent Publication Hei 5-258859 number and Japan Unexamined Patent Publication Hei 6-215874 number etc can be listed.

#### 【0297】

Concretely, first, there is a tris (8 -quinolinolato ) aluminum, bis (8 -quinolinolato ) magnesium, bis (benzo {f} - 8 -quinolinolato ) zinc, bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) aluminum oxide, tris (8 -quinolinolato ) indium, tris (5 -methyl-8-quinolinolato ) aluminum, 8-quinolinolato lithium and a tris (5 -chloro-8-quinolinolato ) gallium, bis (5 -chloro-8-quinolinolato ) calcium, 5,7-dichlor-8-quinolinolato aluminum, tris (5 and 7 -dibromo-8-hydroxy quinolinolato ) aluminum, poly [zinc (II ) -bis (8 -hydroxy-5-quinolinyl ) methane ] etc.

#### 【0298】

In addition,

8 -quinolinol or it is good even with aluminum complex which possesses other ligand to other than its derivative,

As this kind of ones,

bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (phenolate ) aluminum (III ),

bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (ortho- credit Zola jp7 ) aluminum (III ),

bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (meta—cresolato ) aluminum (III ),

bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (para-cresolato ) aluminum (III ),

ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(オルト-フェニルフェノラト)アルミニウム(III) 、

ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(メタ-フェニルフェノラト)アルミニウム(III) 、

ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(パラ-フェニルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,3-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,6-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(3,4-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(3,5-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,6-ジフェニルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,4,6-トリフェニルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,3,6-トリメチルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2,3,5,6-テトラメチルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(1-ナフトラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(2-ナフトラト)アルミニウム(III) 、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラト)(オルト-フェニルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラト)(パラ-フェニルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラト)(メタ-フェニルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラト)(3,5-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラト)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラト)(パラ-クレゾラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラト)(パラ-フェニルフェノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラト)(オルト-クレゾラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-6-トリフルオロメチル-8-キノリノラト)(2-ナフトラト)アルミニウム(III) 等がある。

【0299】

このほか、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) -  $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) -  $\mu$ -オキソ-ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) 、ビス(4-エチル-2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) -  $\mu$ -オキソ-ビス(4-エチル-2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) 、ビス(2-メチル-4-メトキシキノリノラト)アルミニウム(III) -  $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-4-メトキシキノリノラト)アルミニウム(III) 、ビス(5-シアノ-2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) -  $\mu$ -オキソ-ビス(5-シアノ-2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) 等がある。

bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (ortho-phenyl phenolate ) aluminum (III) ,

bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (meta- phenyl phenolate ) aluminum (III) ,

bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (para-phenyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (2 and 3 -dimethyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (2 and 6 -dimethyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (3 and 4 -dimethyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (3 and 5 -dimethyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (3 and 5 -di-t-butyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (2 and 6 -biphenyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (2, 4 and 6 -triphenyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (2, 3 and 6 -trimethyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (2, 3, 5 and 6 -tetramethyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (1 -naphtholato ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) (2 -naphtholato ) aluminum (III) , bis (2 and 4 -dimethyl-8-quinolinolato ) (ortho-phenyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 and 4 -dimethyl-8-quinolinolato ) (para-phenyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 and 4 -dimethyl-8-quinolinolato ) (meta- phenyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 and 4 -dimethyl-8-quinolinolato ) (3 and 5 -dimethyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 and 4 -dimethyl-8-quinolinolato ) (3 and 5 -di-t-butyl phenolate ) aluminum (III) , the bis (2 -methyl-4- ethyl-8-quinolinolato ) (para-cresolato ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-4- methoxy-8-quinolinolato ) (para-phenyl phenolate ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-5-cyano-8-quinolinolato ) (ortho- credit Zola jp7 ) aluminum (III) , there is a bis (2 -methyl-6-trifluoromethyl-8-quinolinolato ) (2 -naphtholato ) aluminum (III) etc.

【0299】

In addition, bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) aluminum (III) - the;  $\mu$ -oxo-bis (2 -methyl-8-quinolinolato ) aluminum (III) , bis (2 and 4 -dimethyl-8-quinolinolato ) aluminum (III) - the;  $\mu$ -oxo-bis (2 and 4 -dimethyl-8-quinolinolato ) aluminum (III) , bis (4 -ethyl -2- methyl-8-quinolinolato ) aluminum (III) - the;  $\mu$ -oxo-bis (4 -ethyl -2- methyl-8-quinolinolato ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-4- methoxy quinolinolato ) aluminum (III) - the;  $\mu$ -oxo-bis (2 -methyl-4- methoxy quinolinolato ) aluminum (III) , bis (5 -cyano -2- methyl-8-quinolinolato ) aluminum (III) - the;  $\mu$ -oxo-bis (5 -cyano -2- methyl-8-quinolinolato ) aluminum (III) , bis (2 -methyl-5-trifluoromethyl-8-quinolinolato )



ル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) -  $\mu$ -オキソ-ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III) 等であってもよい。

【0300】

これらの中でも、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(AIQ3)を用いることが好ましい。

【0301】

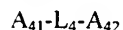
この他、発光層蛍光物質としては、特開平 8-12600 号公報に記載のフェニルアントラセン誘導体や特開平 8-12969 号公報に記載のテトラアリールエテン誘導体なども好ましい。

【0302】

フェニルアントラセン誘導体は、下記の式(4)で表されるものである。

【0303】

式(4)



【0304】

式(4)について説明すると、 $A_{41}$  および  $A_{42}$  は、それぞれモノフェニルアントリル基またはジフェニルアントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

【0305】

$A_{41}$ 、 $A_{42}$  で表されるモノフェニルアントリル基またはジフェニルアントリル基は、無置換でも置換基を有するものであってもよく、置換基を有する場合の置換基としては、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基等が挙げられ、これらの置換基はさらに置換されているともよい。

これらの置換基については後述する。

また、このような置換基の置換位置は特に限定されないが、アントラセン環ではなく、アントラセン環に結合したフェニル基であることが好ましい。

【0306】

また、アントラセン環におけるフェニル基の結合位置はアントラセン環の 9 位、10 位であることが好ましい。

【0307】

aluminum (III) - the;  $\mu$ -oxo-bis it is good even with (2-methyl-5-trifluoromethyl-8-quinolinolato) aluminum (III) etc.

【0300】

tris (8-quinolinolato) aluminum (AIQ 3) is used even among these, it is desirable.

【0301】

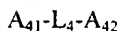
In addition, also phenyl anthracene derivative which is stated in Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-12600 disclosure as luminescent layer phosphor, and tetra aryl ethene derivative etc which is stated in Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-12969 disclosure are desirable.

【0302】

phenyl anthracene derivative is something which is displayed with below-mentioned Formula (4).

【0303】

Formula (4)



【0304】

When you explain concerning Formula (4),  $A_{41}$  and  $A_{42}$  display respective mono phenyl anthryl group or biphenyl anthryl group, these being same, maybe something which differs.

【0305】

Be able to list alkyl group, aryl group, alkoxy group, aryloxy group, amino group etc as substituent when mono phenyl anthryl group or biphenyl anthryl group which is displayed with  $A_{41}$ 、 $A_{42}$  also in may be something which possesses substituent, substituent possesses, as for these substituent furthermore optionally substitutable. unsubstituted

Concerning these substituent it mentions later.

In addition, substituted position of this kind of substituent especially is not limited. It is not a anthracene ring, it is a phenyl group which is connected to anthracene ring, it is desirable.

【0306】

In addition, bond position of phenyl group in anthracene ring is anthracene ring 9-position、10s position, it is desirable.

【0307】

式(4)において、 $L_4$  は単結合または二価の基を表すが、 $L_4$  で表される二価の基としてはアルキレン基等が介在してもよいアリーレン基が好ましい。

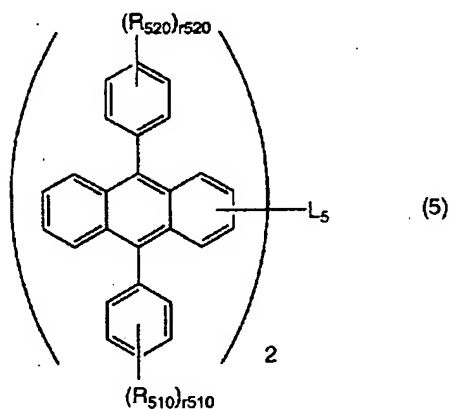
このようなアリーレン基については後述する。

【0308】

式(4)で示されるフェニルアントラセン誘導体の中でも、下記の式(5)、式(6)で示されるものが好ましい。

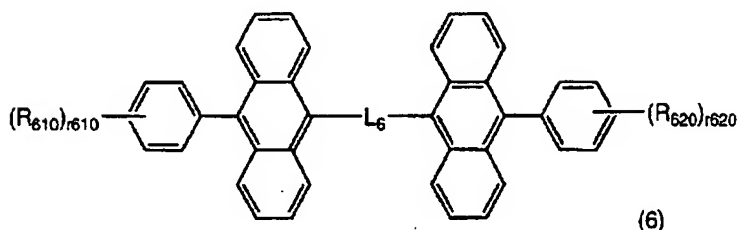
【0309】

【化 101】



【0310】

【化 102】



【0311】

式(5)について説明すると、式(5)において、 $R_{510}$  および  $R_{520}$  は、各々アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基または複素環基を表す。

【0312】

$R_{510}$ 、 $R_{520}$  で表されるアルキル基としては、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素数 1~10、さらには 1~4 の置換もしくは無置換の

In Formula (4),  $L_4$  displays single bond or bivalent group, but such as alkylene group may lie between as bivalent group which is displayed with the  $L_4$  arylene group is desirable.

Concerning this kind of arylene group it mentions later.

【0308】

Below-mentioned Formula (5), those which are shown with Formula (6) are desirable even in phenyl anthracene derivative which is shown with Formula (4).

【0309】

【Chemical Formula 101】

【0310】

【Chemical Formula 102】

【0311】

When you explain concerning Formula (5),  $R_{510}$  and  $R_{520}$  display each alkyl group, cycloalkyl group, aryl group, alkoxy group, aryloxy group, amino group or heterocyclic group in Formula (5).

【0312】

Also it is possible in to be something which possesses branch as alkyl group which is displayed with  $R_{510}$ 、 $R_{520}$ 、carbon number 1~10、furthermore substituted or unsubstituted alkyl

アルキル基が好ましい。

特に、炭素数 1~4 の無置換のアルキル基が好ましく、具体的にはメチル基、エチル基、(n-, i-) プロピル基、(n-, i-, s-, t-) ブチル基等が挙げられる。

[0313]

R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub> で表されるシクロアルキル基としては、シクロヘキシル基、シクロペンチル基等が挙げられる。

[0314]

R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub> で表されるアリール基としては、炭素数 6~20 のものが好ましく、さらにはフェニル基、トリル基等の置換基を有するものであってもよい。

具体的には、フェニル基、(o-, m-, p-) トリル基、ピレニル基、ナフチル基、アントリル基、ビフェニル基、フェニルアントリル基、トリルアントリル基等が挙げられる。

[0315]

R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub> で表されるアルケニル基としては、総炭素数 6~50 のものが好ましく、無置換のものでも置換基を有するものであってもよいが、置換基を有することが好ましい。

このときの置換基としては、フェニル基等のアリール基が好ましい。

具体的には、トリフェニルビニル基、トリトリルビニル基、トリビフェニルビニル基等が挙げられる。

[0316]

R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub> で表されるアルコキシ基としては、アルキル基部分の炭素数が 1~6 のものが好ましく、具体的にはメトキシ基、エトキシ基等が挙げられる。

アルコキシ基は、さらに置換されていてもよい。

[0317]

R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub> で表されるアリーロキシ基としては、フェノキシ基等が挙げられる。

[0318]

R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub> で表されるアミノ基は、無置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換基を有することが好ましく、この場合の置換基としてはアルキル基(メチル基、エチル基等)、アリール基(フェニル基等)などが挙げられる。

具体的にはジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ

group 1 - 4 is desirable. straight chain

Especially, unsubstituted alkyl group of carbon number 1~4 is desirable, can list methyl group, ethyl group, (n-, i-) propyl group, (n-, i-, s-, t-) butyl group etc concretely.

[0313]

You can list cyclohexyl group, cyclopentyl group etc as cycloalkyl group which is displayed with the R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub>.

[0314]

Those of carbon number 6~20 are desirable as aryl group which is displayed with R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub>, furthermore are possible to be something which possesses phenyl group, tolyl group or other substituent.

Concretely, you can list phenyl group, (o-, m-, p-) tolyl group, pyrenyl group, naphthyl group, anthryl group, biphenyl group, phenyl anthryl group, tolyl anthryl group etc.

[0315]

Those of total number of carbon atoms 6~50 are desirable as alkenyl group which is displayed with R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub>, and are possible to be something which possesses substituent in unsubstituted, but it possesses substituent, it is desirable.

As substituent of this time, phenyl group or other aryl group is desirable.

Concretely, you can list triphenyl vinyl group, tritolyl vinyl group, tri biphenyl vinyl group etc.

[0316]

carbon number of alkyl group part thing 1 - 6 is desirable as alkoxy group which is displayed with R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub>, can list methoxy group, ethoxy group etc concretely.

As for alkoxy group, furthermore optionally substitutable.

[0317]

You can list phenoxy group etc as aryloxy group which is displayed with the R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub>.

[0318]

amino group which is displayed with R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub> and in may be something which possesses substituent, but it possesses substituent, it is desirable, alkyl group (methyl group, ethyl group etc), it can list aryl group (phenyl group etc) etc as substituent in this case. unsubstituted

You can list diethyl amino base and diphenylamino group.

基、ジ(m-トリル)アミノ基等が挙げられる。

【0319】

R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub> で表される複素環基としては、ビピリジル基、ピリミジル基、キノリル基、ピリジル基、チエニル基、フリル基、オキサジアゾイル基等が挙げられる。

これらは、メチル基、フェニル基等の置換基を有していてもよい。

【0320】

式(5)において、r<sub>510</sub> および r<sub>520</sub> は、各々、0 または 1~5 の整数を表し、特に 0 または 1 であることが好ましい。

r<sub>510</sub> および r<sub>520</sub> が、各々、1~5 の整数、特に 1 または 2 であるとき、R<sub>510</sub> および R<sub>520</sub> は、各々、アルキル基、アリール基、アルケニル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基であることが好ましい。

【0321】

式(5)において、R<sub>510</sub> と R<sub>520</sub> とは同一でも異なるものであってもよい。

R<sub>510</sub> と R<sub>520</sub> とが各々複数存在するとき、R<sub>510</sub> 同士、R<sub>520</sub> 同士は各々同一でも異なるものであってもよく、R<sub>510</sub> 同士あるいは R<sub>520</sub> 同士は結合してベンゼン環等の環を形成していてもよい。

【0322】

式(5)において、L<sub>5</sub> は単結合またはアリーレン基を表す。

L<sub>5</sub> で表されるアリーレン基としては、無置換であることが好ましく、具体的にはフェニレン基、ビフェニレン基、アントリレン基等の通常のアリーレン基の他、2 個ないしそれ以上のアリーレン基が直接連結したものが挙げられる。

L<sub>5</sub> としては、単結合、p-フェニレン基、4,4'-ビフェニレン基等が好ましい。

【0323】

また、L<sub>5</sub> で表されるアリーレン基は、2 個ないしそれ以上のアリーレン基がアルキレン基、-O-、-S-または-NR-が介在して連結するものであってもよい。

ここで、R はアルキル基またはアリール基を表す。

アルキル基としてはメチル基、エチル基等が挙げられ、アリール基としてはフェニル基等が挙げられる。

di (m-tolyl ) amino group etcconcretely.

[0319]

You can list bipyridyl basis and pyrimidyl group、quinolyl group、pyridyl group、thienyl group、furyl group、oxa diazo yl group etc as heterocyclic group which isdisplayed with R<sub>510</sub>、R<sub>520</sub> .

As for these, methyl group、 phenyl group or other optionally substituted.

[0320]

In Formula (5), r<sub>510</sub> and r<sub>520</sub>, each, display integer of 0 or 1~5, they are especially 0 or 1, it is desirable .

When r<sub>510</sub> and r<sub>520</sub>, each, being a integer、 especially 1 or 2 1- 5, R<sub>510</sub> and R<sub>520</sub> , each, are alkyl group、 aryl group、 alkenyl group、 alkoxy group、 aryloxy group、 amino group, it is desirable.

[0321]

In Formula (5), being same as R<sub>510</sub> and R<sub>520</sub> , it is possible to be something which differs.

When R<sub>510</sub> and R<sub>520</sub> each plural existing, R<sub>510</sub> , R<sub>520</sub> being each same, it is possible to be something which differs, the R<sub>510</sub> or connecting R<sub>520</sub> , to form benzene ring or other ring it is possible.

[0322]

In Formula (5), L<sub>5</sub> displays single bond or arylene group.

It is a unsubstituted as arylene group which is displayed with L<sub>5</sub> , it isdesirable , concretely other than phenylene group、 biphenylene group、 anthrylene group or other conventional arylene group, 2 or it can listthose which arylene group above that connects directly.

As L<sub>5</sub> , single bond、 p- phenylene group、 4,4'-biphenylene group etc is desirable.

[0323]

In addition, arylene group which is displayed with L<sub>5</sub> , 2 or the arylene group above that lying between, alkylene group、 -O-、 -S- or -NR- may be somethingwhich is connected.

Here, R displays alkyl group or aryl group.

You can list methyl group、 ethyl group etc as alkyl group, you can list phenyl group etc as aryl group.

中でも、アリール基が好ましく、上記のフェニル基のほか、 $A_{41}$ 、 $A_{42}$  であってもよく、さらにはフェニル基に  $A_{41}$  または  $A_{42}$  が置換したものであってもよい。

また、アルキレン基としてはメチレン基、エチレン基等がこの好ましい。

【0324】

このようなアリーレン基の具体例を以下に示す。

【0325】

【化 103】

And aryl group is desirable among them, other than above-mentioned phenyl group, is good with  $A_{41}$ 、 $A_{42}$  , furthermore is possible to be something which  $A_{41}$  or  $A_{42}$  substitutes in phenyl group.

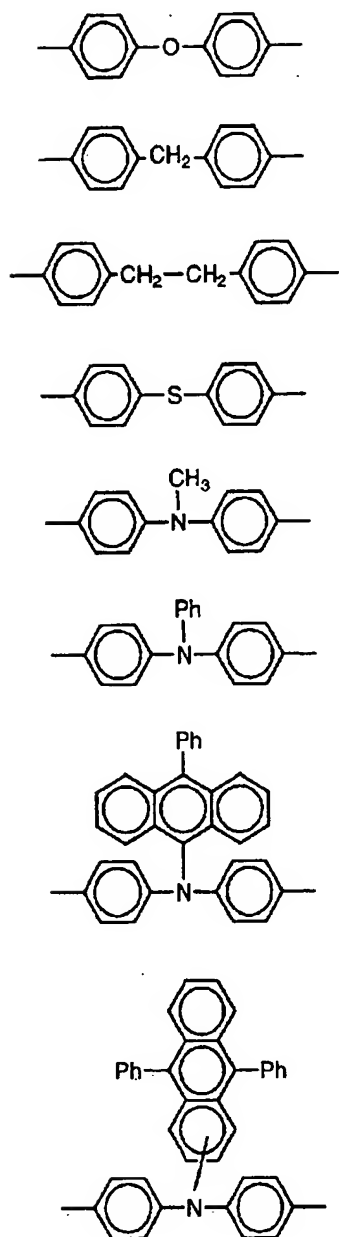
In addition, methylene group、ethylene group etc this is desirable as alkylene group.

[0324]

embodiment of this kind of arylene group is shown below.

[0325]

[Chemical Formula 103]



【0326】

次に、式(6)について説明すると、式(6)において、 $R_{610}$  および  $R_{620}$  は式(5)における  $R_{510}$  および  $R_{520}$  と、また  $r_{610}$  および  $r_{620}$  は式(5)における  $r_{510}$  および  $r_{520}$  と、さらに  $L_6$  は式(5)における  $L_5$  とそれぞれ同義であり、好ましいものも同様である。

【0327】

式(6)において、 $R_{610}$  と  $R_{620}$  とは同一でも異なる

【0326】

When next, you explain concerning Formula (6), in Formula (6), as for  $R_{610}$  and  $R_{620}$  as for  $R_{510}$  and  $R_{520}$  and in addition  $r_{610}$  and  $r_{620}$  in Formula (5)  $r_{510}$  and the  $r_{520}$  in Formula (5) and, furthermore as for  $L_6$   $L_5$  in Formula (5) being synonymous respectively, also desirable ones are similar.

【0327】

In Formula (6), being same as  $R_{610}$  and  $R_{620}$ , it is possible to

ものであってもよい。

$R_{610}$  と  $R_{620}$  とが各々複数存在するとき、 $R_{610}$  同士、 $R_{620}$  同士は各々同一でも異なるものであってもよく、 $R_{610}$  同士あるいは  $R_{620}$  同士は結合してベンゼン環等の環を形成していてもよい。

[0328]

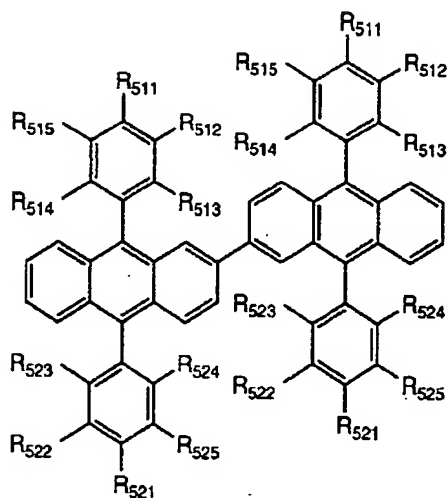
式(4)で表される化合物を以下に例示するが、これらに限定されるものではない。

なお、化 104、化 106、化 108、化 110、化 112、化 114、化 116 では一般式を示し、化 105、化 107、化 109、化 111、化 113、化 115、化 117~118 で、各々対応する具体例を  $R_{511} \sim R_{515}$ 、 $R_{521} \sim R_{525}$  あるいは  $R_{611} \sim R_{615}$ 、 $R_{621} \sim R_{625}$  の組合せで示している。

[0329]

【化 104】

I



[0330]

【化 105】

be something which differs.

When  $R_{610}$  and  $R_{620}$  each plural existing,  $R_{610}$ ,  $R_{620}$  being each same, it is possible to be something which differs, the  $R_{610}$  or connecting  $R_{620}$ , to form benzene ring or other ring it is possible.

[0328]

compound which is displayed with Formula (4) is illustrated below, but it is not something which is limited in these.

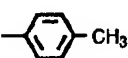

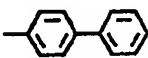
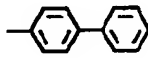
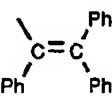
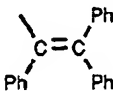
Furthermore, with Chemical Formula 10 4、Chemical Formula 10 6、Chemical Formula 10 8、Chemical Formula 11 0、Chemical Formula 11 2、Chemical Formula 11 4、Chemical Formula 11 6 General Formula is shown, with Chemical Formula 10 5、Chemical Formula 10 7、Chemical Formula 10 9、Chemical Formula 11 1、Chemical Formula 11 3、Chemical Formula 11 5、Chemical Formula 11 7~118, each embodiment which corresponds has been shown with combination of the  $R_{511} \sim R_{515}$ 、 $R_{521} \sim R_{525}$  or  $R_{611} \sim R_{615}$ 、 $R_{621} \sim R_{625}$ .

[0329]

[Chemical Formula 104]

[0330]

[Chemical Formula 105]

化合物 No.	R <sub>511</sub>	R <sub>512</sub>	R <sub>513</sub>	R <sub>514</sub>	R <sub>515</sub>	R <sub>52</sub>	R <sub>522</sub>	R <sub>523</sub>	R <sub>524</sub>	R <sub>525</sub>
I-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
I-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
I-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
I-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
I-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
I-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
I-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
I-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
I-9		H	H	H	H		H	H	H	H
I-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
I-11	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H
I-12	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
I-13	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>
I-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
I-15	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
I-16		H	H	H	H		H	H	H	H
I-17	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
I-18	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
I-19		H	H	H	H		H	H	H	H
I-20	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H

【0331】

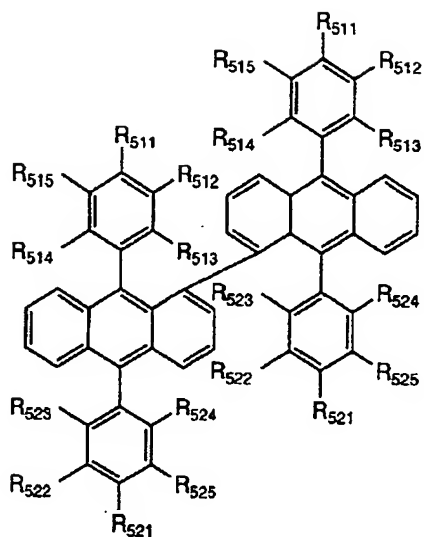
【化 106】

[0331]

[Chemical Formula 106]



II


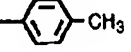
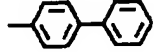
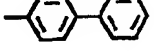


【0332】

【化 107】

[0332]

[Chemical Formula 107]

化合物 No.	R <sub>511</sub>	R <sub>512</sub>	R <sub>513</sub>	R <sub>514</sub>	R <sub>515</sub>	R <sub>516</sub>	R <sub>522</sub>	R <sub>523</sub>	R <sub>524</sub>	R <sub>525</sub>
II-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
II-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
II-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
II-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
II-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
II-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
II-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
II-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
II-9		H	H	H	H		H	H	H	H
II-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
II-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
II-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
II-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
II-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
II-15	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
II-16		H	H	H	H		H	H	H	H
II-17	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
II-18	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H

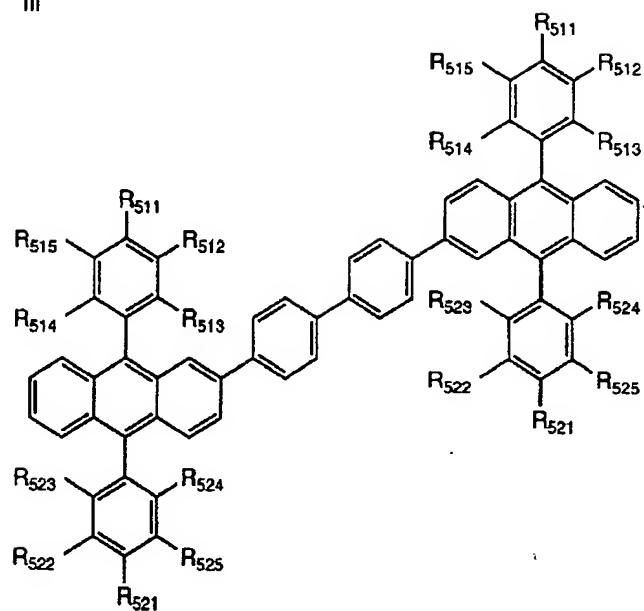
【0333】

【0333】

【化 108】

【Chemical Formula 108】

III

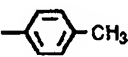

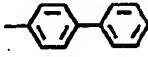
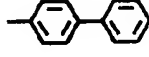


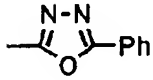
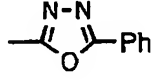
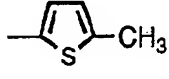
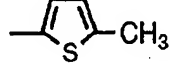
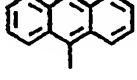
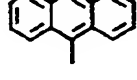


【0334】

【化 109】

[0334]

[Chemical Formula 109]

化合物 No.	R <sub>511</sub>	R <sub>512</sub>	R <sub>513</sub>	R <sub>514</sub>	R <sub>515</sub>	R <sub>521</sub>	R <sub>522</sub>	R <sub>523</sub>	R <sub>524</sub>	R <sub>525</sub>
III-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
III-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
III-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
III-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
III-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
III-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
III-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
III-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
III-9		H	H	H	H		H	H	H	H
III-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
III-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
III-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
III-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
III-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
III-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
III-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
III-17		H	H	H	H		H	H	H	H
III-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
III-19		H	H	H	H		H	H	H	H
III-20		H	H	H	H		H	H	H	H
III-21		H	H	H	H		H	H	H	H
III-22		H	H	H	H		H	H	H	H

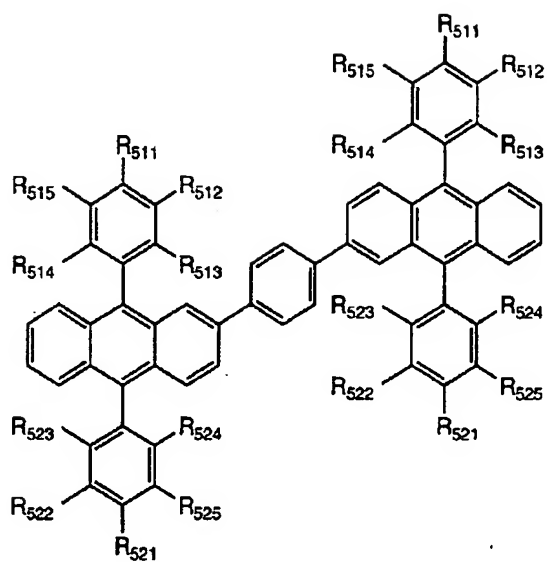
【0335】

【化 110】

[0335]

[Chemical Formula 110]

IV


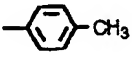
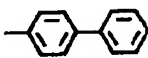
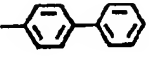


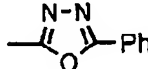
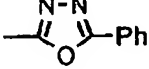


【0336】

【化 111】

[0336]

[Chemical Formula 111]

化合物 No.	R <sub>511</sub>	R <sub>512</sub>	R <sub>513</sub>	R <sub>514</sub>	R <sub>515</sub>	R <sub>521</sub>	R <sub>522</sub>	R <sub>523</sub>	R <sub>524</sub>	R <sub>525</sub>
IV-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
IV-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
IV-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
IV-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
IV-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
IV-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
IV-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
IV-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
IV-9		H	H	H	H		H	H	H	H
IV-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
IV-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
IV-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
IV-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
IV-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
IV-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
IV-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
IV-17		H	H	H	H		H	H	H	H
IV-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
IV-19		H	H	H	H		H	H	H	H
IV-20		H	H	H	H		H	H	H	H

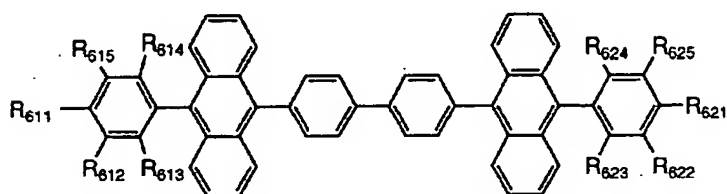
【0337】

【化 112】

v

【0337】

【Chemical Formula 112】



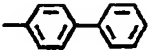
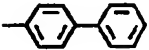
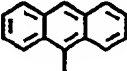
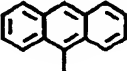




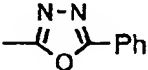
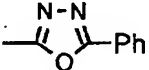
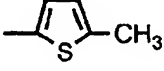
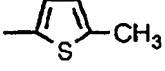


【0338】

【0338】

【化 113】

[Chemical Formula 113]

化合物 No.	R <sub>611</sub>	R <sub>612</sub>	R <sub>613</sub>	R <sub>614</sub>	R <sub>615</sub>	R <sub>621</sub>	R <sub>622</sub>	R <sub>623</sub>	R <sub>624</sub>	R <sub>625</sub>
V-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
V-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
V-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
V-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
V-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
V-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
V-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
V-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
V-9		H	H	H	H		H	H	H	H
V-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
V-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
V-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
V-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
V-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
V-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
V-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
V-17		H	H	H	H		H	H	H	H
V-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
V-19		H	H	H	H		H	H	H	H
V-20		H	H	H	H		H	H	H	H
V-21		H	H	H	H		H	H	H	H
V-22		H	H	H	H		H	H	H	H
V-23		H	H	H	H		H	H	H	H

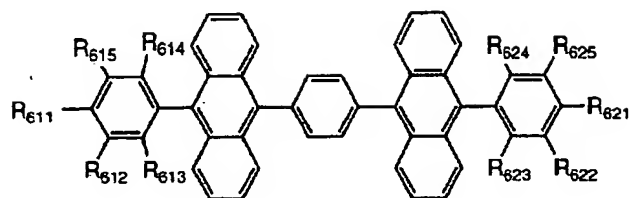
【0339】

[0339]

【化 114】

[Chemical Formula 114]

VI



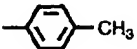

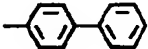
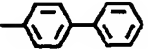
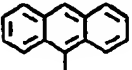
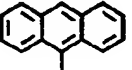


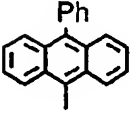
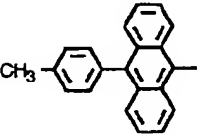


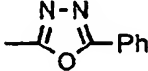
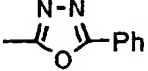
【0340】

[0340]

【化 115】

[Chemical Formula 115]



化合物 No.	R <sub>611</sub>	R <sub>612</sub>	R <sub>613</sub>	R <sub>614</sub>	R <sub>615</sub>	R <sub>621</sub>	R <sub>622</sub>	R <sub>623</sub>	R <sub>624</sub>	R <sub>625</sub>
VI-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
VI-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VI-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
VI-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VI-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
VI-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
VI-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
VI-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
VI-9		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-10	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
VI-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
VI-12	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
VI-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
VI-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>
VI-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
VI-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
VI-17		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
VI-19		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-20		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-21		H	H	H	H	H	H	H	H	H
VI-22		H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VI-23		H	H	H	H		H	H	H	H
VI-24		H	H	H	H		H	H	H	H

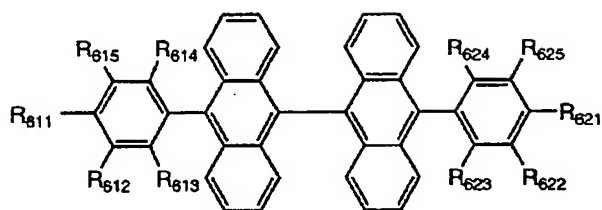
【0341】

【0341】

【化 116】

[Chemical Formula 116]

VII



【0342】

【0342】

【化 117】

[Chemical Formula 117]

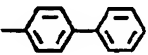
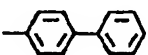
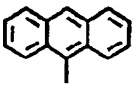
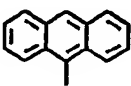


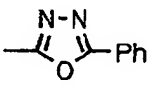
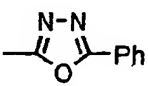
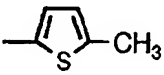
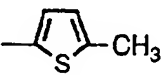
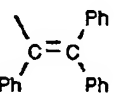
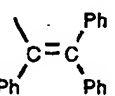
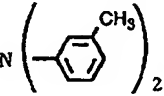
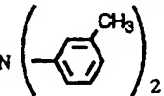
化合物 No.	R <sub>611</sub>	R <sub>612</sub>	R <sub>613</sub>	R <sub>614</sub>	R <sub>615</sub>	R <sub>621</sub>	R <sub>622</sub>	R <sub>623</sub>	R <sub>624</sub>	R <sub>625</sub>
VII-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H	H
VII-2	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VII-3	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
VII-4	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H
VII-5	OPh	H	H	H	H	OPh	H	H	H	H
VII-6	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	H	H	H
VII-7	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H	N(Ph) <sub>2</sub>	H	H	H	H
VII-8	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H	H
VII-9		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-10	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H
VII-11	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>
VII-12	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H
VII-13	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	CH <sub>3</sub>	H	H
VII-14	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>

【0343】

【0343】

【化 118】

[Chemical Formula 118]

化合物 No.	R <sub>611</sub>	R <sub>612</sub>	R <sub>613</sub>	R <sub>614</sub>	R <sub>615</sub>	R <sub>621</sub>	R <sub>622</sub>	R <sub>623</sub>	R <sub>624</sub>	R <sub>625</sub>
VII-15	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H	H
VII-16	H	H	Ph	H	H	H	H	Ph	H	H
VII-17		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-18	t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	H	H	H	H	H
VII-19		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-20		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-21		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-22		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-23		H	H	H	H		H	H	H	H
VII-24	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H	H	H	H
VII-25	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	H	H
VII-26	H	R <sub>612</sub> とR <sub>613</sub> とで 縮合ベンゼン環				H	R <sub>622</sub> とR <sub>623</sub> とで 縮合ベンゼン環			
VII-27		H	H	H	H		H	H	H	H

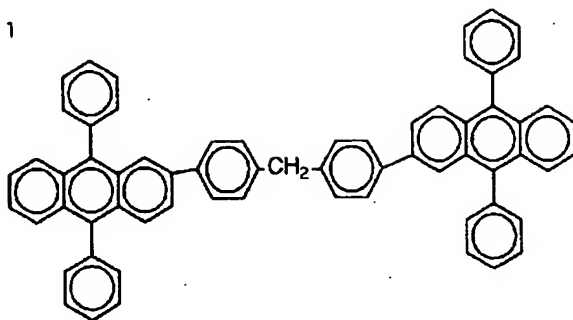
【0344】

【化 119】

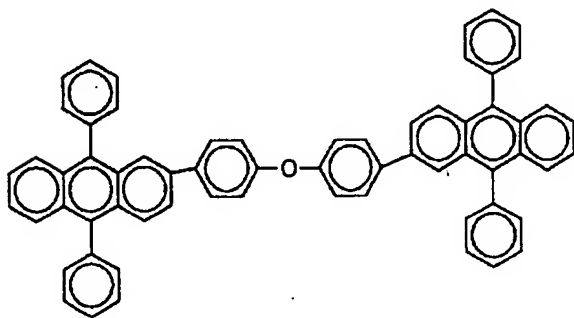
【0344】

【Chemical Formula 119】

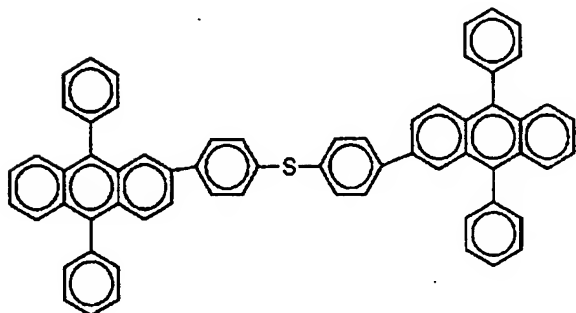
VIII - 1



VIII - 2



VIII - 3



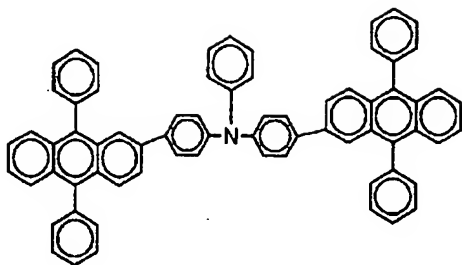
【0345】

【化 120】

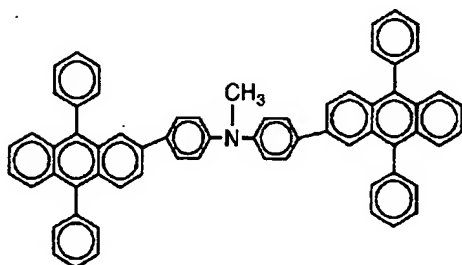
【0345】

【Chemical Formula 120】

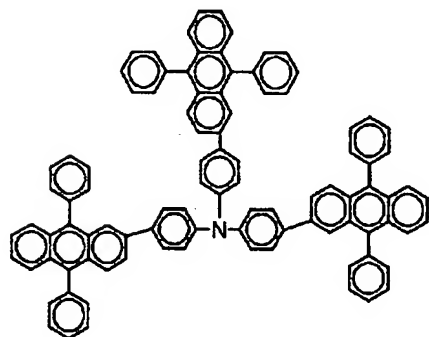
VIII - 4



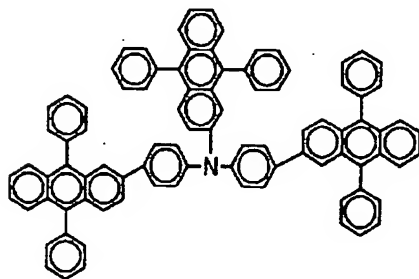
VIII - 5



VIII - 6



VIII - 7



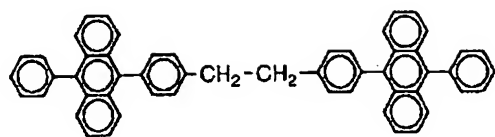
【0346】

【化 121】

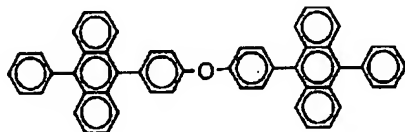
[0346]

[Chemical Formula 121]

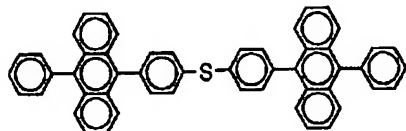
IX - 1



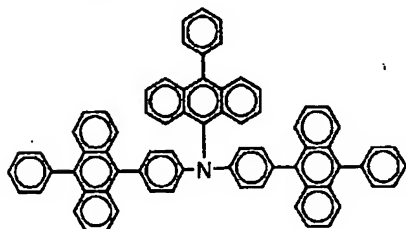
IX - 2



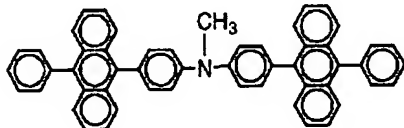
IX - 3



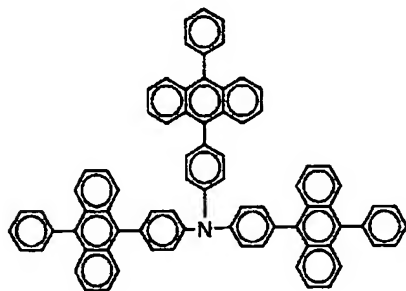
IX - 4



IX - 5



IX - 6



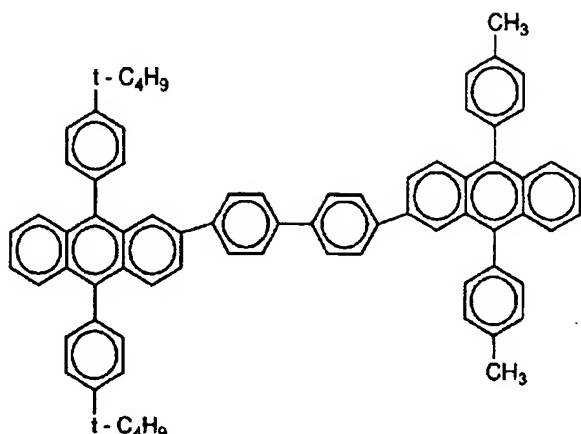
[0347]

[化 122]

[0347]

[Chemical Formula 122]

X - 1



[0348]

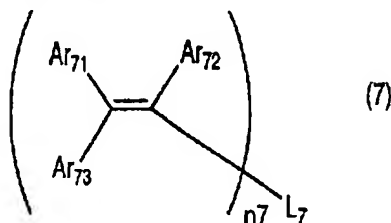
上記のフェニルアントラセン誘導体は、(1)ハロゲン化ジフェニルアントラセン化合物を、 $\text{Ni}(\text{cod})_2$  [cod:1,5-シクロオクタジエン]でカップリング、もしくはジハロゲン化アリールをグリニャール化し、 $\text{NiCl}_2$  (dppe)[dppe:ジフェニルフォスフィノエタン]、 $\text{NiCl}_2$  (dppp)[dppp:ジフェニルフォスフィノプロパン]等のNi錯体などを用いてクロスカップリングする方法、(2)アントラキノン、ベンゾキノン、フェニルアンスロンもしくはビアントロンとグリニャール化したアリールもしくはリチオ化したアリールとの反応および還元によりクロスカップリングする方法、等により合成できる。

[0349]

また、発光層蛍光物質として好ましいテトラアリールエテン誘導体は、下記の一般式(7)で表される化合物である。

[0350]

【化 123】



[0351]

一般式(7)において、 $\text{Ar}_{71}$ 、 $\text{Ar}_{72}$  および  $\text{Ar}_{73}$  は、各々芳香族残基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

[0348]

As for above-mentioned phenyl anthracene derivative, (1) halogenation biphenyl anthracene compound, method  $\text{Ni}(\text{cod})_2$  to Grignard of converting coupling, or dihalogenation aryl with {cod:1,5-cyclooctadiene},  $\text{NiCl}_2$  (dppe) [dppe: diphenylphosphino ethane], making use of  $\text{NiCl}_2$  (dppp) {dppp: diphenylphosphino propane} or other Ni complex etc the cross-coupling doing. With reaction and reduction with (2) anthraquinone, benzoquinone, phenyl Anthron or bianthrone and the Grignard aryl or lithium conversion which are converted aryl which is done cross-coupling method of doing. It can synthesize such as with.

[0349]

In addition, desirable tetra aryl ethene derivative is compound which is displayed with below-mentioned general formula (7) as luminescent layer phosphor.

[0350]

[Chemical Formula 123]

[0351]

In general formula (7),  $\text{Ar}_{71}$ ,  $\text{Ar}_{72}$  and  $\text{Ar}_{73}$  display each aromatic residue, these being same, may be something which differs.

Ar<sub>71</sub> ~ Ar<sub>73</sub> で表される芳香族残基としては、芳香族炭化水素基(アリール基)、芳香族複素環基が挙げられる。

【0352】

芳香族炭化水素基としては、単環もしくは多環の芳香族炭化水素基であってよく、縮合環や環集合も含まれる。

芳香族炭化水素基は、総炭素数が6~30のものが好ましく、置換基を有するものであってもよい。

置換基を有する場合の置換基としては、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基等が挙げられる。

この置換基については後述する。

芳香族炭化水素基としては、例えばフェニル基、アルキルフェニル基、アルコキシフェニル基、アリールフェニル基、アリーロキシフェニル基、アミノフェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、アントリル基、ピレニル基、ペリレニル基等が挙げられる。

【0353】

また、芳香族複素環基としては、ヘテロ原子としてO、N、Sを含むものが好ましく、5員環であっても6員環であってもよい。

具体的には、チエニル基、フリル基、ピローリル基、ピリジル基等が挙げられる。

【0354】

Ar<sub>71</sub> ~ Ar<sub>73</sub> で表される芳香族残基としては、特にフェニル基が好ましい。

【0355】

n<sub>7</sub> は2~6の整数であり、特に2~4の整数であることが好ましい。

【0356】

L<sub>7</sub> は n 価の芳香族残基を表すが、特に芳香族炭化水素、芳香族複素環、芳香族エーテル(芳香族チオエーテルを含む。)または芳香族アミンから誘導される2~6価、特に2~4価の残基であることが好ましい。

これらの芳香族残基は、さらに置換基を有するものであってもよい。

【0357】

なお、この中で、発光材料とするととき、L<sub>7</sub> は、オキシ基(-O-)、チオ基(-S-)、イミノ基(-NR<sub>O</sub> -:R<sub>O</sub> はアリール基)、複素環ジイル基、アルケニレン

aromatic hydrocarbon group (aryl group), you can list heteroaromatic group as aromatic residue which is displayed with Ar<sub>71</sub> ~ Ar<sub>73</sub>.

【0352】

As aromatic hydrocarbon group, it is possible to be a aromatic hydrocarbon group of monocycle or polycycle, also the fused ring and ring fusion are included.

As for aromatic hydrocarbon group, total number of carbon atoms thing 6 - 30 is desirable, is possible to be something which possesses substituent.

You can list alkyl group, aryl group, alkoxy group, aryloxy group, amino group etc as substituent when it possesses substituent.

Concerning this substituent it mentions later.

As aromatic hydrocarbon group, you can list for example phenyl group, alkylphenyl group, alkoxy phenyl group, aryl phenyl group, aryloxy phenyl group, amino phenyl group, biphenyl group, naphthyl group, anthryl group, pyrenyl group, perylenyl group etc.

【0353】

In addition, as heteroaromatic group, those which include O, N, S as heteroatom are desirable, with 5-member ring and are good with 6-member ring.

Concretely, you can list thienyl group, furyl group, pyrrol group, pyridyl group etc.

【0354】

Especially phenyl group is desirable as aromatic residue which is displayed with Ar<sub>71</sub> ~ Ar<sub>73</sub>.

【0355】

n<sub>7</sub> with integer of 2 - 6, especially is integer 2 - 4, it is desirable.

【0356】

L<sub>7</sub> displays aromatic residue of n-valence, but especially aromatic hydrocarbon, aromatic heterocycle, aromatic ether (aromatic thioether is included.) or 2 - hexavalent, which is induced from aromatic amine especially it is 2 - a quaternary residue, it is desirable.

These aromatic residue furthermore may be something which possesses substituent.

【0357】

Furthermore, when among these, making light-emitting material, as for L<sub>7</sub>, the oxy group (-O-), thio group (-S-), imino group (As for -NR<sub>O</sub> -:R<sub>O</sub> aryl group), arylene group,



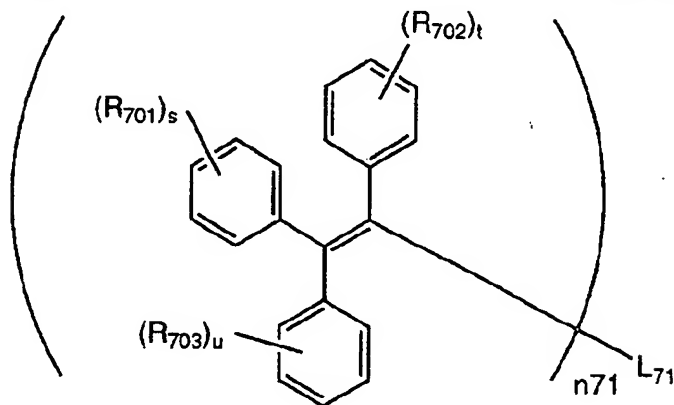
基およびアルキレン基のうちの 1 種以上が介在したアリーレン基、炭素数が 21 以上、好ましくは 21~100、さらに好ましくは 24~50 のアリーレン基、芳香族炭化水素の 3~6 価の残基または芳香族複素環、芳香族エーテルもしくは芳香族アミンの 2~6 価の残基であるものが好ましい。

【0358】

化 123 の中でも化 124 で示されるテトラアリールエテン誘導体が好ましい。

【0359】

【化 124】



【0360】

化 124 について説明すると、 $R_{701}$ 、 $R_{702}$  および  $R_{703}$  は、各々、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーロキシ基またはアミノ基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

【0361】

$R_{701}$  ~  $R_{703}$  で表されるアルキル基としては、炭素数 1~10 のものが好ましく、直鎖状であっても分岐を有するものであってもよく、さらには置換基を有するものであってもよく、例えばメチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*i*-プロピル基、*n*-ブチル基、*t*-ブチル基等が挙げられる。

【0362】

$R_{701}$  ~  $R_{703}$  で表されるアリール基としては、炭素数 6~20 のものが好ましく、置換基を有するものであってもよく、例えばフェニル基、*o*-トリル基、*m*-トリル基、*p*-トリル基、ナフチル基、アントリル基等が挙げられる。

【0363】

carbon number where one kind or more inside heterocycle diyl group, alkenylene group and alkylene group lies between 21 or more, preferably 21~100, furthermore those which a residue of 2 - hexavalent of residue or aromatic heterocycle, aromatic ether or aromatic amine of 3 - hexavalent of arylene group, aromatic hydrocarbon of preferably 24~50 are is desirable.

【0358】

tetra aryl ethene derivative which even in Chemical Formula 1 23 is shown with Chemical Formula 1 24 isdesirable.

【0359】

[Chemical Formula 124]

【0360】

When you explain concerning Chemical Formula 1 24,  $R_{701}$ 、 $R_{702}$  and  $R_{703}$ , each, display alkyl group, aryl group, alkoxy group, aryloxy group or amino group, these being same, may be something which differs.

【0361】

Those of carbon number 1~10 are desirable as alkyl group which is displayed with  $R_{701}$  ~  $R_{703}$ , also are possible in to be something which possesses the branch, furthermore to be something which possesses substituent are possible, for example methyl group, ethyl group, *n*-propyl group, *i*-propyl group, *n*-butyl group, *t*-butyl group etc can list. straight chain

【0362】

Those of carbon number 6~20 are desirable as aryl group which is displayed with  $R_{701}$  ~  $R_{703}$ , are possible to be something which possesses substituent, the for example phenyl group, *o*-tolyl group, *m*-tolyl group, *p*-tolyl group, naphthyl group, anthryl group etc can list.

【0363】

R<sub>701</sub> ~R<sub>703</sub> で表されるアルコキシ基としては、アルコキシ基のアルキル基部分の炭素数が 1~6 のものが好ましく、例えばメトキシ基、エトキシ基、t-ブトキシ基等が挙げられる。

[0364]

R<sub>701</sub> ~R<sub>703</sub> で表されるアリーロキシ基としては、フェノキシ基、4-メチルフェノキシ基、4-(t-ブチル)フェノキシ基等が挙げられる。

[0365]

R<sub>701</sub> ~R<sub>703</sub> で表されるアミノ基としては、置換基を有するものが好ましく、例えばジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ビス(ジフェニル)アミノ基等が挙げられる。

[0366]

s, t および u は、各々、0 または 1~5 の整数であり、s, t, u が 2 以上の整数であるとき、R<sub>701</sub> 同士、R<sub>702</sub> 同士、R<sub>703</sub> 同士は、各々同一でも異なるものであってもよい。

[0367]

化 124 において、s, t および u は、各々、0 または 1 であることが好ましく、特に 0 であること、すなわち無置換のフェニル基であることが好ましい。

[0368]

L<sub>71</sub> は、アリーレン基、アレーントリイル基、アレーンテトライル基、複素環ジイル基、複素環トリイル基、複素環テトライル基、トリアリールアミンもしくはその多量体のジイル基、トリアリールアミンもしくはその多量体のトリイル基、トリアリールアミンもしくはその多量体のテトライル基、アリーール置換複素環ジイル基、アリーール置換複素環トリイル基またはアリーール置換複素環テトライル基を表す。

これらはさらに置換されていてもよい。

L<sub>71</sub> で表されるアリーレン基、アレーントリイル基、アレーンテトライル基は、オキシ基(-O-)、チオ基(-S-)、イミノ基(-NR<sub>O</sub> -:R<sub>O</sub>) はフェニル基等のアリーール基)、複素環ジイル基、アルケニル基およびアルキレン基のうちの 1 種以上が介在していてもよい。

[0369]

このようなアリーレン基、アレーントリイル基、アレーンテトライル基は、総炭素数が 6 以上、さらには 21 以上、特に 21~100、さらに特に 24~50 であることが好ましい。

carbon number of alkyl group part of alkoxy group thing 1 - 6 is desirable as alkoxy group which is displayed with R<sub>701</sub> ~R<sub>703</sub>, can list for example methoxy group, ethoxy group, t-butoxy group etc.

[0364]

You can list phenoxy group, 4- methyl phenoxy group, 4- (t-butyl ) phenoxy group etc as aryloxy group which is displayed with R<sub>701</sub> ~R<sub>703</sub> .

[0365]

Those which possess substituent as amino group which is displayed with the R<sub>701</sub> ~R<sub>703</sub>, are desirable, can list for example dimethylamino group, diethyl amino base and diphenylamino group, bis (biphenyl ) amino group etc.

[0366]

As for s, t and u, when each, with integer of 0 or 1~5, s, t, u is integer of 2 or more, R<sub>701</sub>, R<sub>702</sub>, as for the R<sub>703</sub>, being each same, it is possible to be something which differs.

[0367]

In Chemical Formula 1 24, s, t and u, each, are 0 or 1, it is desirable, especially 0 is, namely it is a unsubstituted phenyl group, it is desirable .

[0368]

L<sub>71</sub> displays diyl group, triaryl amine of arylene group, arene triyl group, arene tetra yl group, heterocycle diyl group, heterocycle triyl group, heterocycle tetra yl group, triaryl amine or oligomer or triyl group, triaryl amine of oligomer or tetra yl group, aryl substitution heterocycle diyl group, aryl substitution heterocycle triyl group or the aryl substitution heterocycle tetra yl group of oligomer.

As for these furthermore optionally substitutable.

As for arylene group, arene triyl group, arene tetra yl group which is displayed with L<sub>71</sub>, oxy group (-O-), the thio group (-S-), imino group (As for -NR<sub>O</sub> -:R<sub>O</sub> phenyl group or other aryl group), one kind or more inside heterocycle diyl group, alkenyl group and alkylene group has been allowed to have lain between.

[0369]

As for this kind of arylene group, arene triyl group, arene tetra yl group, total number of carbon atoms is 6 or greater, furthermore 21 or more, especially 21 - 100, furthermore especially 24 - 50, it is desirable.

L<sub>71</sub> で表されるアリーレン基として、具体的にはフェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基、ジフェニルエーテルジイル基、ジフェニルチオエーテルジイル基、ジフェニルメチルジイル基、ジフェニルオキサジアゾールジイル基、テルフェニレン基等が挙げられる。

アリーントリイル基としては、ベンゼントリイル基、クアテルフェニルトリイル基等が挙げられる。

アリーントトライル基としては、テトラフェニルエテンテトライル基等が挙げられる。

このような基にはフェニルエチル基等が置換されていてよい。

【0370】

L<sub>71</sub> で表される複素環ジイル基としては、チオフエンジイル基、フランジイル基、ピリジンジイル基、ピチオフエンジイル基、ピフランジイル基、ビピリジンジイル基、ピラジンジイル基、ピロールジイル基、ビピロールジイル基、キノリンジイル基、オキサジアゾールジイル基、キノキサリンジイル基、ジフェニルキノキサリンジイル基等が挙げられる。

複素環トリイル基としてはイソキノリントリイル基等が挙げられ、複素環テトライル基としては、キノキサリントテトライル基等が挙げられる。

これらの基は、さらにメトキシ基等の置換基を有していてもよい。

【0371】

L<sub>71</sub> で表されるトリアリールアミンまたはその多量体のジイル基としては、トリフェニルアミンジイル基等が挙げられ、トリアリールアミンまたはその多量体のトリイル基としては、トリフェニルアミントリイル基等が挙げられる。

また、トリアリールアミンまたはその多量体のテトライル基としては、N,N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノ-1,1'-ビフェニルテトライル基等が挙げられる。

なお、トリアリールアミンの多量体は通常 2~4 量体程度のものである。

【0372】

L<sub>71</sub> で表されるアリール置換複素環ジイル基としては、ジフェニルオキサジアゾールジイル基等が挙げられ、アリール置換複素環トリイル基としては、ジフェニルオキサジアゾールトリイル基、ジフェニルキノキサリントリイル基等が挙げられ、アリール置換複素環テトライル基としては、

You can list phenylene group, biphenylene group, naphthylene group, diphenylether diyl group, biphenyl thioether diyl group, diphenylmethyl diyl group, biphenyl oxadiazole diyl group, テ jpl l phenylene group etc concretely as arylene group which is displayed with L<sub>71</sub>.

As arene triyl group, you can list benzene triyl group, quaterphenyl triyl group etc.

As arene tetra yl group, you can list tetra phenyl ethene tetra yl group etc.

In this kind of basis phenyl Ⅰ dust jpl l basis etc optionally substitutable.

[0370]

You can list thiophenediyl basis, furandiyl basis, pyridinediyl basis, bithiophene diyl group, フ furandiyl basis, bipyridine diyl group, pyrazine diyl group, pyrrole diyl basis and bipyrrrole diyl group, quinoline diyl group, oxadiazole diyl group, quinoxaline diyl group, biphenyl quinoxaline diyl group etc as heterocycle diyl group which is displayed with L<sub>71</sub>.

You can list isoquinoline triyl group etc as heterocycle triyl group, you can list quinoxaline tetra yl group etc as heterocycle tetra yl group.

As for these groups, furthermore methoxy group or other optionally substituted.

[0371]

You can list triphenyl amine diyl group etc triaryl amine which is displayed with L<sub>71</sub> or as diyl group of oligomer, you can list triphenyl amine triyl group etc triaryl amine or as triyl group of oligomer.

In addition, N, N'-tetra phenyl — you can list 4 and 4'-diamino-1, 1'-biphenyl tetra yl group etc triaryl amine or as tetra yl group of oligomer.

Furthermore, oligomer of triaryl amine is things such as usually 2 - the tetramer extent.

[0372]

You can list biphenyl oxadiazole diyl group etc as aryl substitution heterocycle diyl group which is displayed with L<sub>71</sub>, you can list biphenyl oxadiazole triyl group, biphenyl quinoxaline triyl group etc as aryl substitution heterocycle triyl group, you can list biphenyl quinoxaline tetra yl group etc as aryl substitution heterocycle tetra yl group.

ジフェニルキノキサリントライル基等が挙げられる。

【0373】

L<sub>71</sub> の好適例を以下に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0374】

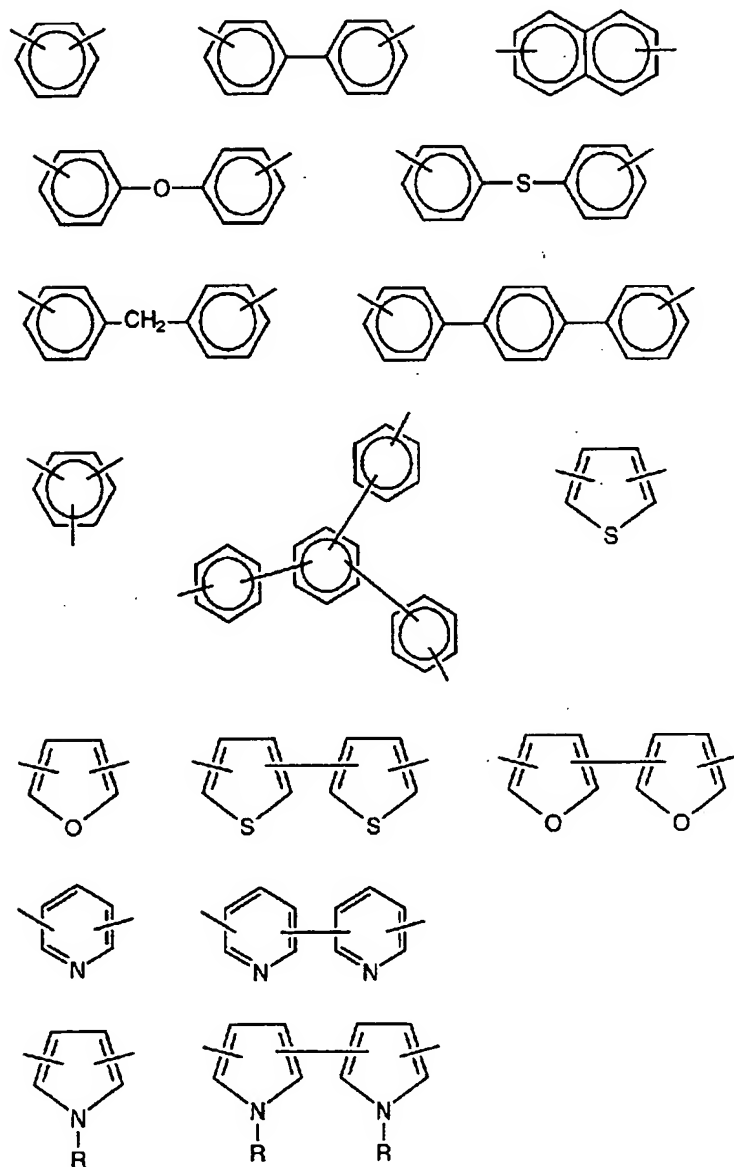
【化 125】

【0373】

Ideal example of L<sub>71</sub> is shown below, but this invention is not something which is limited in these.

【0374】

[Chemical Formula 125]



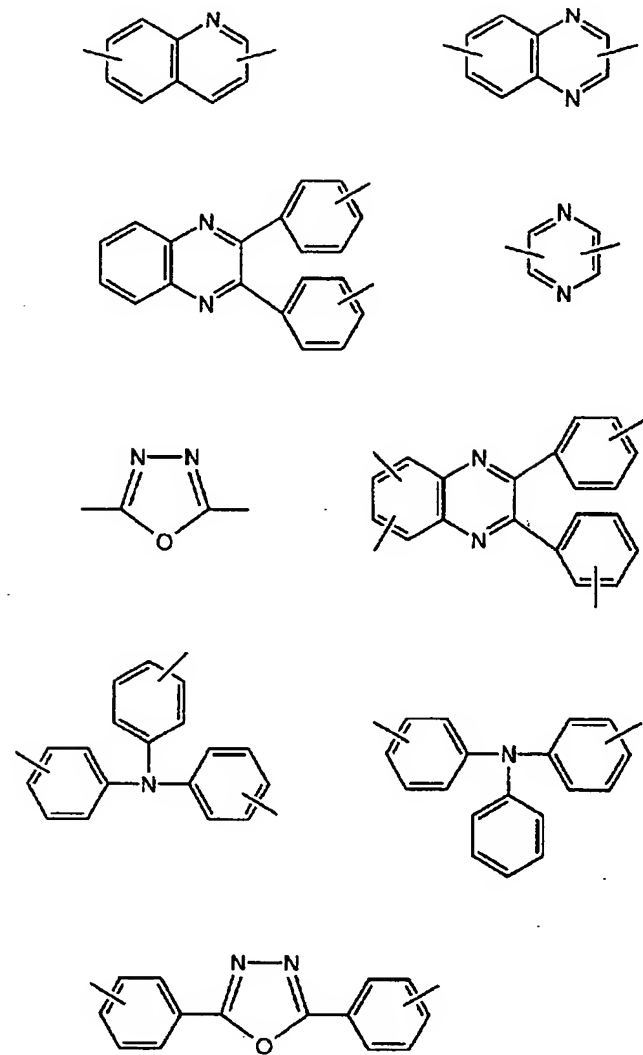
(R = H, C H<sub>3</sub>等のアルキル基等)

【0375】

【0375】

【化 126】

[Chemical Formula 126]

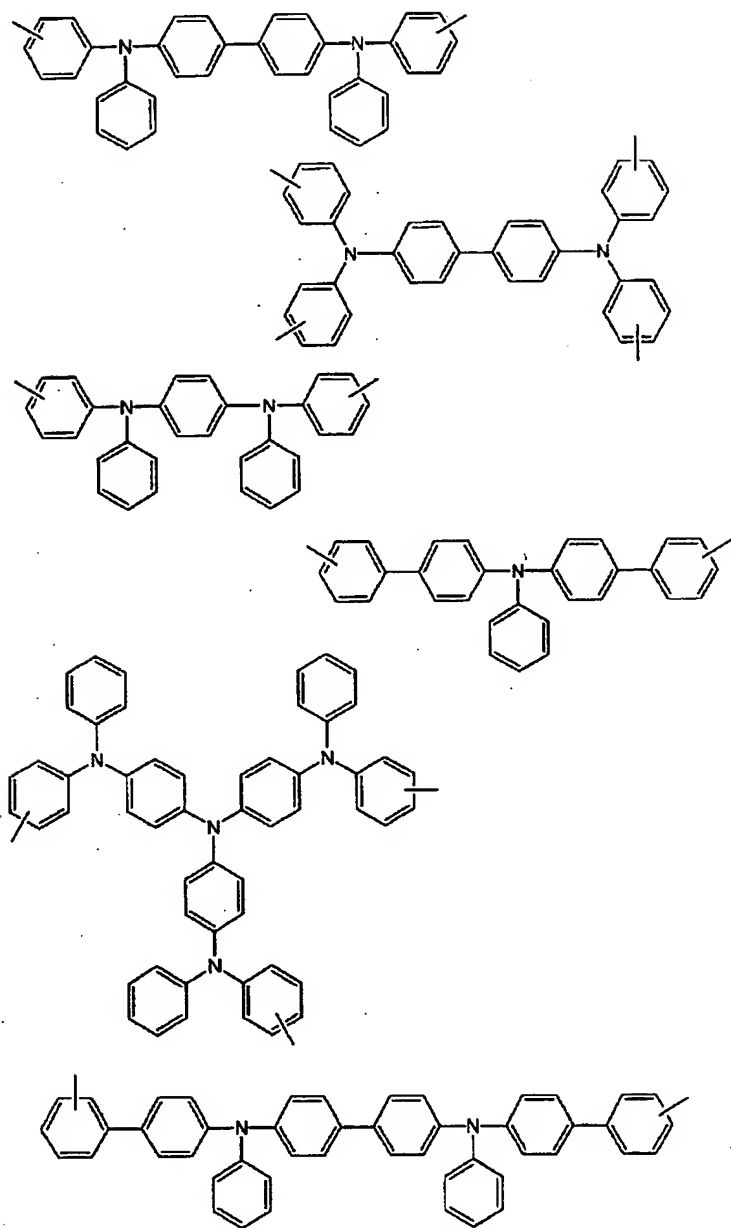


【0376】

[0376]

【化 127】

[Chemical Formula 127]

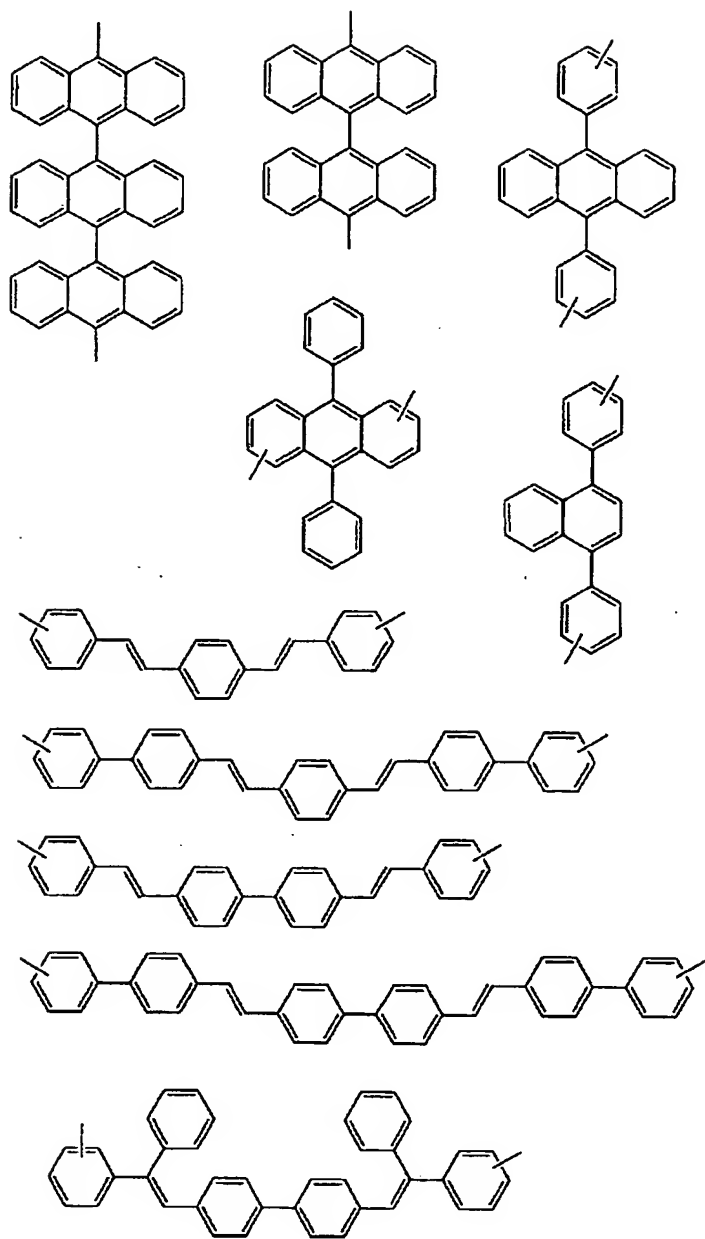


【0377】

【化 128】

【0377】

【Chemical Formula 128】

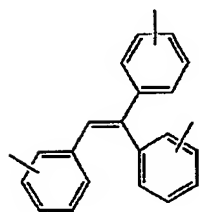
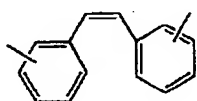
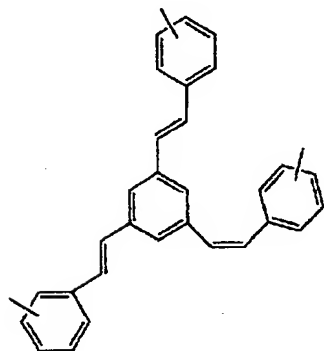
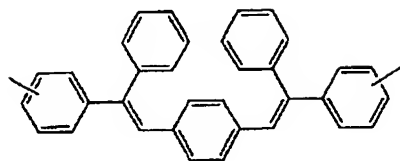


【0378】

【化 129】

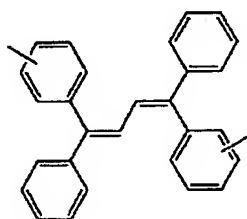
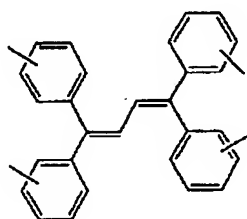
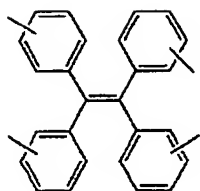
[0378]

[Chemical Formula 129]



【0379】

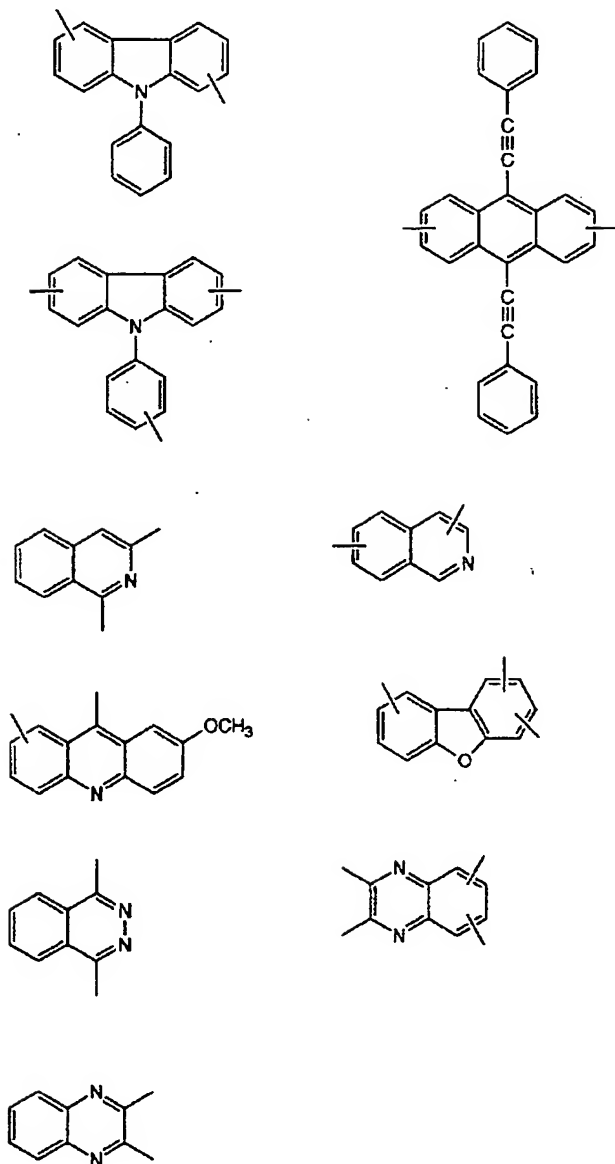
【化 130】



【0379】

[Chemical Formula 130]





## 【0380】

化 124 において、 $n_{71}$  は  $L_{71}$  の価数によるが、2~4 の整数であり、好ましくは 2 または 3、特に 2 であることが好ましい。

## 【0381】

なお、正孔注入輸送性化合物として用いるときの  $L_{71}$  としては、複素環ジイル基、複素環トリイル基、複素環テトライル基、トリアリールアミン誘導体ジイル基、トリアリールアミン誘導体トリイル基、トリアリールアミン誘導体テトライル基またはイミノ基( $-NR_O$ 、 $-R_O$  はアリール基)が介在してもよいアリーレン基、アレーントリイル基また

## 【0380】

In Chemical Formula 1 24,  $n_{71}$  is with valence number of  $L_{71}$ , with integer 2 -4, preferably 2 or 3, especially 2, it is desirable.

## 【0381】

Furthermore, when using, as positive hole injection transporting compound it is a arylene group, arene triyl group or a arene tetra yl group the heterocycle diyl group, heterocycle triyl group, heterocycle tetra yl group, triaryl amine derivative diyl group, triaryl amine derivative triyl group, triaryl amine derivative tetra yl group or imino group (As for  $-NR_O$   $-R_O$  aryl group ) may lie between as  $L_{71}$ , it is

はアレーンテトライル基であることが好ましい。

【0382】

また、電子注入輸送性化合物として用いるときの  $L_{71}$  としては、オキシ基(-O-)、チオ基(-S-)、複素環ジイル基およびアルキレン基のうちの 1 種以上が介在していてもよいアリーレン基、アレーントリイル基もしくはアレーンテトライル基、複素環ジイル基、複素環トリイル基、複素環テトライル基、アリール置換複素環ジイル基、アリール置換複素環トリイル基またはアリール置換複素環テトライル基であることが好ましい。

【0383】

また、発光材料として用いるときの  $L_{71}$  としては、オキシ基(-O-)、チオ基(-S-)、イミノ基(-NR<sub>O</sub>-R<sub>O</sub> はアリール基)、複素環ジイル基、アルケニレン基およびアルキレン基のうちの 1 種以上が介在したアリーレン基、炭素数が 21 以上、さらに好ましくは 21~100、特に好ましくは 24~50 のアリーレン基、オキシ基(-O-)、チオ基(-S-)、イミノ基(-NR<sub>O</sub>-R<sub>O</sub> はアリール基)、複素環ジイル基、アルケニレン基およびアルキレン基のうちの 1 種以上が介在してもよいアレーントリイル基もしくはアレーンテトライル基、複素環ジイル基、複素環トリイル基、複素環テトライル基、トリアリールアミンもしくはその多量体のジイル基、トリアリールアミンもしくはその多量体のトリイル基、トリアリールアミンもしくはその多量体のテトライル基、アリール置換複素環ジイル基、アリール置換複素環トリイル基またはアリール置換複素環テトライル基であるものが好ましい。

【0384】

このようなテトラアリールエテン誘導体の好適例を以下に示すが、これらに限定されるものではない。

なお、化 131 は一般式であり、化 132~化 139 では化 131 の表示を用いて示している。

$R_{711} \sim R_{715}$ 、 $R_{721} \sim R_{725}$ 、 $R_{731} \sim R_{735}$  については、すべて水素のときは H とし、いずれかが置換基のときは置換基のみを示すものとする。

なお、併せて、化合物の属性を記す。

正孔注入輸送性化合物のときは h、電子注入輸送性化合物のときは e とし、特に示さないものは弱い電子輸送性もしくはニュートラル(バイポール)とする。

この中の化合物のうち、青色発光材料とできるのは化合物 No.1~4、14、21、23~26、32、42、

desirable.

【0382】

In addition, when using, as electron implantation transporting compound oxy group (-O-), thio group (-S-), it is a arylene group, arene triyl group or a arene tetra yl group, heterocycle diyl group, heterocycle triyl group, heterocycle tetra yl group, aryl substitution heterocycle diyl group, aryl substitution heterocycle triyl group or a aryl substitution heterocycle tetra yl group one kind or more inside heterocycle diyl group and alkylene group has been allowed to have lain between as  $L_{71}$ , it is desirable.

【0383】

In addition, when using, as light-emitting material as  $L_{71}$ , oxy group (-O-), the thio group (-S-), imino group (As for -NR<sub>O</sub>-R<sub>O</sub> aryl group), arylene group, carbon number where one kind or more inside heterocycle diyl group, alkenylene group and alkylene group lies between 21 or more, furthermore arylene group, oxy group of preferably 21~100, particularly preferably 24~50 (-O-), thio group (-S-), imino group (As for -NR<sub>O</sub>-R<sub>O</sub> aryl group), Those which are a diyl group, triaryl amine of arene triyl group or arene tetra yl group, heterocycle diyl group, heterocycle triyl group, heterocycle tetra yl group, triaryl amine or oligomer the one kind or more inside heterocycle diyl group, alkenylene group and alkylene group may lie between or a triyl group, triaryl amine of the oligomer or a tetra yl group, aryl substitution heterocycle diyl group, aryl substitution heterocycle triyl group or a aryl substitution heterocycle tetra yl group of oligomer are desirable.

【0384】

Ideal example of this kind of tetra aryl ethene derivative is shown below, but it is not something which is limited in these.

Furthermore, with General Formula, with Chemical Formula 13 2~Chemical Formula 13 9 it has shown Chemical Formula 13 1 making use of indication of Chemical Formula 13 1.

Concerning  $R_{711} \sim R_{715}$ 、 $R_{721} \sim R_{725}$ 、 $R_{731} \sim R_{735}$ , at time of all hydrogen it makes H, when any is substituent, show only substituent.

Furthermore, together, attribute of compound is inscribed.

At time of positive hole injection transporting compound at time of h, electron implantation transporting compound it makes e, those which especially are not shown do weak electron transport ability or neutral (Bi- pole) with.

Among compound among these, what it can make blue light-emitting material is compound No.1~4、1 4, 2 1, 2

43、47~59 等である。

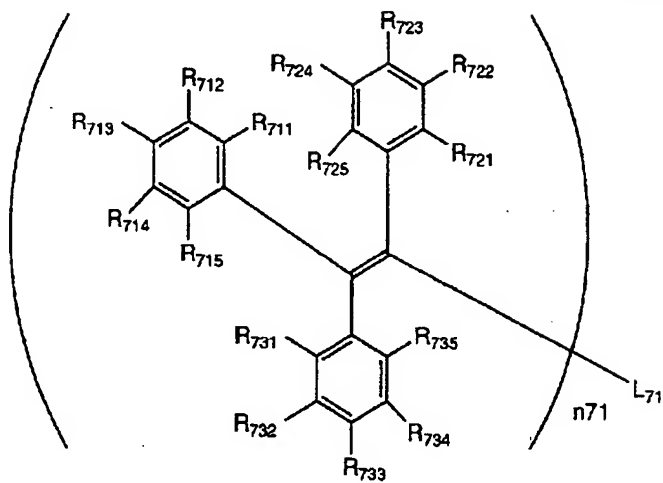
3~26、32、42、43、47~59 etc.

【0385】

[0385]

【化 131】

[Chemical Formula 131]

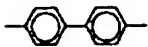


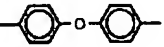
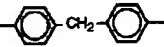
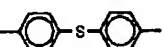
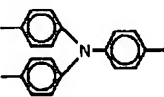

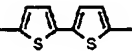

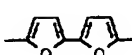


【0386】

[0386]

【化 132】

[Chemical Formula 132]


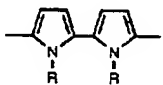
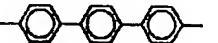
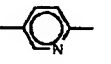
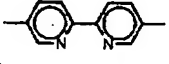


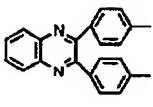
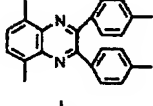
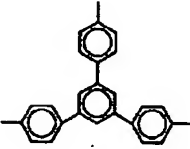
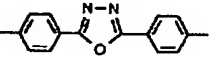
化合物 No.	R <sub>711</sub> ~R <sub>715</sub>	R <sub>721</sub> ~R <sub>725</sub>	R <sub>731</sub> ~R <sub>735</sub>	n <sub>71</sub>	L <sub>71</sub>
1	H	H	H	2	
2	H	H	H	2	
3	H	H	H	3	
4	H	H	H	2	
5	H	H	H	2	
6	H	H	H	2	
7	H	H	H	3	 (h)
8	H	H	H	2	 (h)
9	H	H	H	2	 (h)
10	H	H	H	2	 (h)
11	H	H	H	2	 (h)

【0387】

【化 133】

【0387】

【Chemical Formula 133】

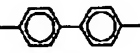
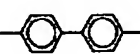

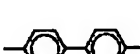




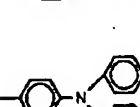
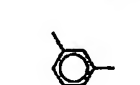
化合物 No.	R <sub>711</sub> ~R <sub>715</sub>	R <sub>721</sub> ~R <sub>725</sub>	R <sub>731</sub> ~R <sub>735</sub>	n <sub>71</sub>	L <sub>71</sub>
12	H	H	H	2	 (h)
13	H	H	H	2	 (h)
14	H	H	H	2	 (e)
15	H	H	H	2	 (e)
16	H	H	H	2	 (e)
17	H	H	H	2	 (e)
18	H	H	H	2	 (e)
19	H	H	H	2	 (e)
20	H	H	H	4	 (e)
21	H	H	H	3	 (e)
22	H	H	H	2	 (e)

【0388】

【化 134】

【0388】

【Chemical Formula 134】

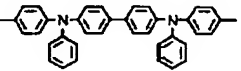
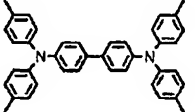
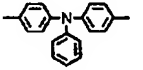
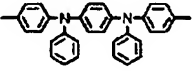
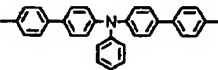
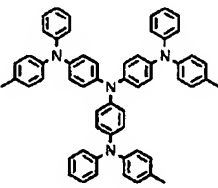
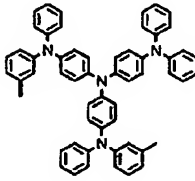
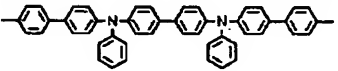
化合物 No.	R <sub>711</sub> ~R <sub>715</sub>	R <sub>721</sub> ~R <sub>725</sub>	R <sub>731</sub> ~R <sub>735</sub>	n <sub>71</sub>	L <sub>71</sub>
23	R <sub>713</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>723</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>733</sub> =CH <sub>3</sub>	2	 (e)
24	R <sub>713</sub> =t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	R <sub>723</sub> =t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	R <sub>733</sub> =t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	2	
25	R <sub>713</sub> =t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	R <sub>723</sub> =t-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	R <sub>733</sub> =CH <sub>3</sub>	2	
26	R <sub>713</sub> =Ph	R <sub>723</sub> =Ph	R <sub>733</sub> =Ph	2	
27	R <sub>713</sub> =N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	R <sub>723</sub> =N(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub>	H	2	
28	R <sub>713</sub> =N(Ph) <sub>2</sub>	R <sub>723</sub> =N(Ph) <sub>2</sub>	R <sub>733</sub> =CH <sub>3</sub>	2	
29	R <sub>713</sub> =OCH <sub>3</sub>	R <sub>723</sub> =OCH <sub>3</sub>	H	2	
30	R <sub>713</sub> =OPh	R <sub>723</sub> =OPh	H	2	
31	R <sub>713</sub> =N(Ph) <sub>2</sub>	R <sub>723</sub> =N(Ph) <sub>2</sub>	H	3	
32	R <sub>713</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>723</sub> =CH <sub>3</sub>	R <sub>733</sub> =CH <sub>3</sub>	3	

[0389]

[化 135]

[0389]

[Chemical Formula 135]

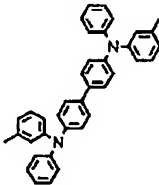
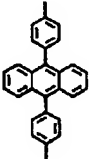
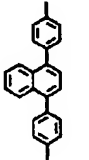
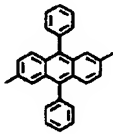
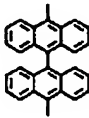
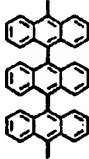
化合物 No.	R <sub>711</sub> ~R <sub>715</sub>	R <sub>721</sub> ~R <sub>725</sub>	R <sub>731</sub> ~R <sub>735</sub>	n <sub>71</sub>	L <sub>71</sub>
33	H	H	H	2	 (h)
34	H	H	H	4	 (h)
35	H	H	H	2	 (h)
36	H	H	H	2	 (h)
37	H	H	H	2	 (h)
38	H	H	H	3	 (h)
39	H	H	H	3	 (h)
40	H	H	H	2	 (h)

【0390】

【化 136】

【0390】

【Chemical Formula 136】

化合物 No.	R <sub>711</sub> ~R <sub>715</sub>	R <sub>721</sub> ~R <sub>725</sub>	R <sub>731</sub> ~R <sub>735</sub>	n <sub>71</sub>	L <sub>71</sub>
41	H	H	H	2	
42	H	H	H	2	
43	H	H	H	2	
44	H	H	H	2	
45	H	H	H	2	
46	H	H	H	2	

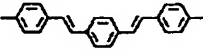
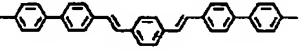
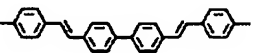
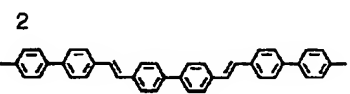
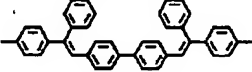
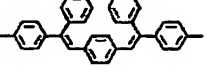
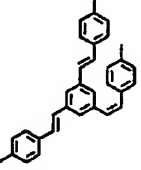

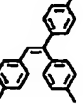
【0391】

【化 137】

【0391】

【Chemical Formula 137】



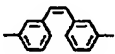
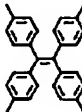
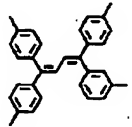
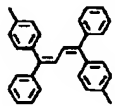
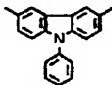
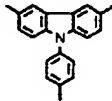
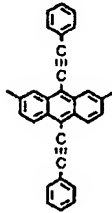
化合物 No.	R <sub>711</sub> ~R <sub>715</sub>	R <sub>721</sub> ~R <sub>725</sub>	R <sub>731</sub> ~R <sub>735</sub>	n <sub>71</sub>	L <sub>71</sub>
47	H	H	H	2	
48	H	H	H	2	
49	H	H	H	2	
50	H	H	H	2	
51	H	H	H	2	
52	H	H	H	2	
53	H	H	H	3	
54	H	H	H	2	
55	H	H	H	3	

【0392】

【化 138】

【0392】

【Chemical Formula 138】

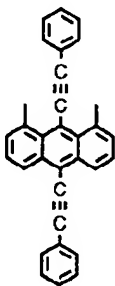
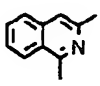
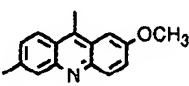



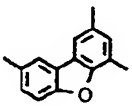
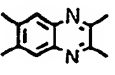
化合物 No.	R <sub>711</sub> ~R <sub>715</sub>	R <sub>721</sub> ~R <sub>725</sub>	R <sub>731</sub> ~R <sub>735</sub>	n <sub>71</sub>	L <sub>71</sub>
56	H	H	H	2	
57	H	H	H	4	
58	H	H	H	4	
59	H	H	H	2	
60	H	H	H	2	 (h)
61	H	H	H	3	 (h)
62	H	H	H	2	

【0393】

【化 139】

[0393]

[Chemical Formula 139]

化合物					
No.	R <sub>711</sub> ~R <sub>715</sub>	R <sub>721</sub> ~R <sub>725</sub>	R <sub>731</sub> ~R <sub>735</sub>	n <sub>71</sub>	L <sub>71</sub>
63	H	H	H	2	
64	H	H	H	2	 (e)
65	H	H	H	2	 (e)
66	H	H	H	2	 (e)
67	H	H	H	2	 (e)
68	H	H	H	2	 (e)
69	H	H	H	3	
70	H	H	H	4	 (e)

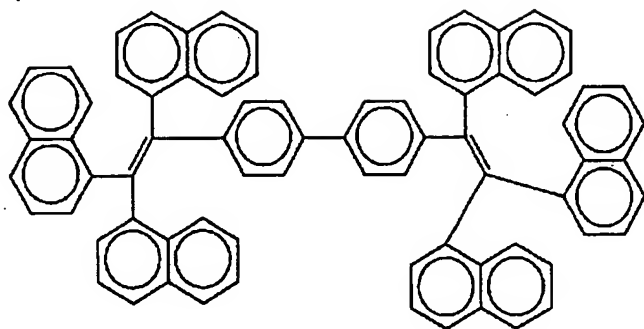
【0394】

[0394]

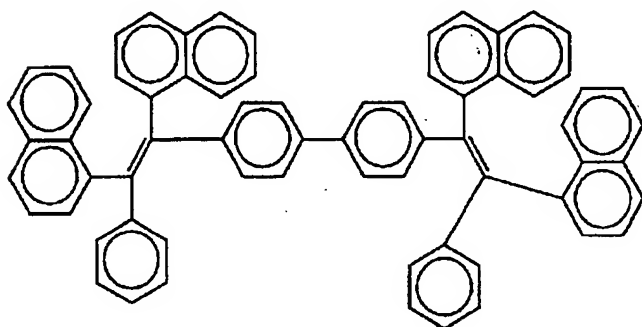
【化 140】

[Chemical Formula 140]

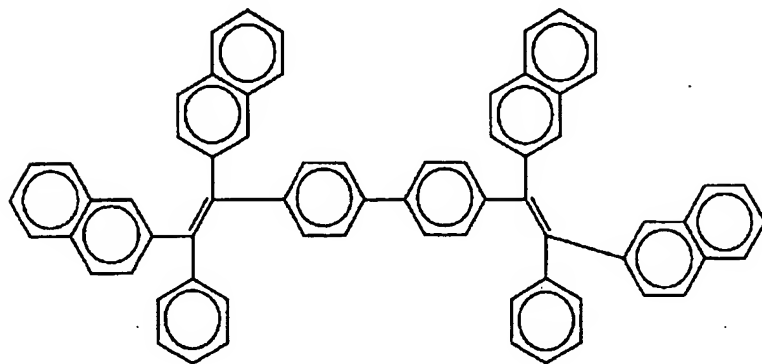
7 1



7 2



7 3



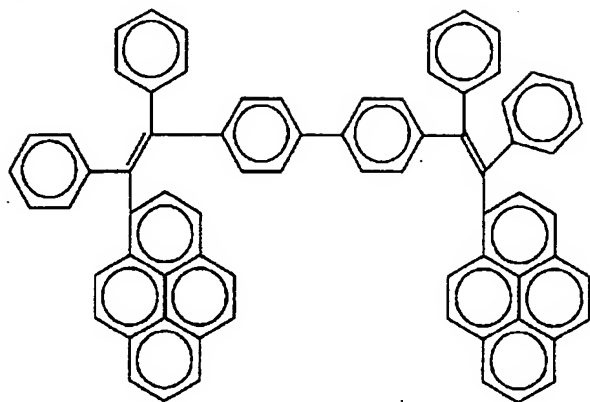
【0395】

[0395]

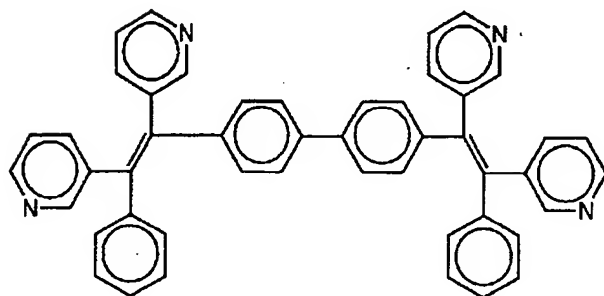
【化 141】

[Chemical Formula 141]

7 4



7 5



【0396】

上記のテトラアリアルエテン誘導体は、(1)ハロゲン化トリフェニルエテン化合物等の芳香族残基三置換ハロゲン化エーテルをグリニャール化し、 $\text{NiCl}_2(\text{dppp})$  (dppp:ジフェニルフォスフィノプロパン)等の Ni 錯体などを用いて、ジハロゲン化アリアル誘導体等のジ、トリ、テトラ、ペンタもしくはヘキサハロゲン化芳香族化合物とクロスカップリングする方法、(2)ジハロゲン化アリアル誘導体等のジ、トリ、テトラ、ペンタもしくはヘキサハロゲン化芳香族化合物をグリニャール化し、 $\text{NiCl}_2(\text{dppp})$ 等の Ni 錯体などを用いてハロゲン化トリフェニルエテン誘導体等の芳香族残基三置換ハロゲン化エテンとクロスカップリングする方法、等により合成できる。

【0397】

本発明の有機 EL 素子では、発光層蛍光物質として、特に、ルブレン等のナフタセン誘導体を用いることが好ましい。

ナフタセン誘導体等の縮合環芳香族炭化水素化合物としては、特開平 8-311442 号公報、

[0396]

Method above-mentioned tetra aryl ethene derivative to Grignard converting (1) halogenation triphenyl ethene compound or other aromatic residue trisubstituted halogenation ether, making use of  $\text{Ni Cl}_2$  (dppp) {dppp: diphenylphosphino propane} or other Ni complex etc, dihalogenation aryl derivative or other di, tri, tetra, penta or hexa halogenated aromatic chemical compound and cross-coupling doing. Method to Grignard of converting (2) dihalogenation aryl derivative or other di, tri, tetra, penta or the hexa halogenated aromatic chemical compound, making use of  $\text{Ni Cl}_2$  (dppp) or other Ni complex etc the halogenation triphenyl ethene derivative or other aromatic residue trisubstituted halogenation ethene and cross-coupling doing. It can synthesize such as with.

[0397]

<naphthacene derivative>this invention with organic electroluminescent element, especially, rubrene or other naphthacene derivative is used as luminescent layer phosphor, it is desirable .

As naphthacene derivative or other fused ring aromatic hydrocarbon chemical compound, you can list compound

PCT-JP-02869 号明細書、特願平 10-137505 号公報等に記載の化合物が挙げられる。

ナフタセン誘導体はバイポーラな輸送性を有しており、これをドーピングすると、バイポーラに安定なナフタセン誘導体でもキャリア再結合が起こるので、その分さらにホスト有機化合物が受けるダメージは少なくなる。

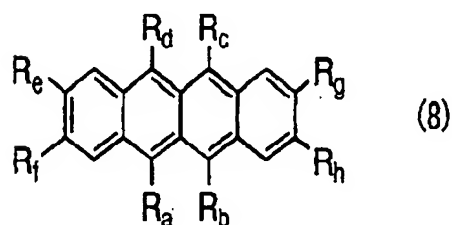
また、ナフタセン誘導体がキャリア再結合領域近傍に存在するため、ホストの励起子からナフタセン誘導体へのエネルギー移動が起こり、非放射的失活が少なくなり、その結果、安定した高効率の発光が得られ、かつ、素子の寿命が大幅に向上する。

【0398】

ルブレン等のナフタセン誘導体は、下記式(8)で表される基本骨格を有する化合物である。

【0399】

【化 142】



【0400】

式(8)において、R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub>およびR<sub>d</sub>はそれぞれ非置換、または置換基を有するアルキル基、アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基のいずれかを表し、アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基のいずれかであることが好ましい。

【0401】

R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub>およびR<sub>d</sub>で表されるアリール基としては、単環もしくは多環のものであってよく、縮合環や環集合も含まれる。

総炭素数は、6~30 のものが好ましく、置換基を有していてもよい。

【0402】

R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub>およびR<sub>d</sub>で表されるアリール基としては、好ましくはフェニル基、(o-,m-,p-)トリル基、ピレニル基、ペリレニル基、コロネニル基、(1-,2-)ナフチル基、アントリル基、(o-,m-,p-)ビフェニリ

which is stated in Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-31 1442 disclosure, PCT-JP-02869 specification, Japan Patent Application Hei 10-137505 disclosure etc.

naphthalene derivative bipolar to have had transporting, when this is done the dope, because in bipolar stability carrier recombination happens even with the naphthalene derivative, damage which furthermore host organic compound receives that much decreases.

In addition, because naphthalene derivative exists in carrier recombination territory vicinity, energy transfer to naphthalene derivative happens from exciton of host, non-emission inactivation decreases, as a result, light emitting of high efficiency which is stabilized is acquired, at same time, lifetime of element improves greatly.

【0398】

rubrene or other naphthalene derivative is compound which possesses basic framework which is displayed with below-mentioned Formula (8).

【0399】

[Chemical Formula 142]

【0400】

In Formula (8), R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub> and R<sub>d</sub> display any of the alkyl group, aryl group, amino group, heterocyclic group and alkenyl group which possess respective unsubstituted, or substituent, it is a any of aryl group, amino group, heterocyclic group and alkenyl group, it is desirable .

【0401】

It is possible to be something of monocycle or polycycle as aryl group which is displayed with R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub> and R<sub>d</sub>, also fused ring and ring fusion are included.

As for total number of carbon atoms, thing 6 - 30 to be desirable, optionally substituted.

【0402】

It is a preferably phenyl group、(o-,m-, p-) tolyl group、pyrenyl group、perylene group、coronene basis and a (1 - 2-) naphthyl group、anthryl group、(o-,m-, p-) biphenyl group、terphenyl group、phenanthryl group etc as aryl

ル基、ターフェニル基、フェナントリル基等である。

【0403】

R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub> および R<sub>d</sub> で表されるアミノ基としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラキルアミノ基等いずれでもよい。

これらは、総炭素数 1~6 の脂肪族、およびまたは 1~4 環の芳香族炭素環を有することが好ましい。

具体的には、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ビスジフェニルアミノ基、ビスナフチルアミノ基等が挙げられる。

【0404】

R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub> および R<sub>d</sub> で表される複素環基としては、ヘテロ原子として O,N,S を含有する 5 員または 6 員環の芳香族複素環基、および炭素数 2~20 の縮合多環芳香族複素環基等が挙げられる。

芳香族複素環基および縮合多環芳香族複素環基としては、例えばチエニル基、フリル基、ピロリル基、ピリジル基、キノリル基、キノキサリル基等が挙げられる。

【0405】

R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub> および R<sub>d</sub> で表されるアルケニル基としては、少なくとも置換基の 1 つにフェニル基を有する(1-, および 2-)フェニルアルケニル基、(1,2-, および 2,2-)ジフェニルアルケニル基、(1,2,2-)トリフェニルアルケニル基等が好ましいが、非置換のものであってもよい。

【0406】

R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub> および R<sub>d</sub> が置換基を有する場合、これらの置換基のうちの少なくとも 2 つがアリール基、アミノ基、複素環基、アルケニル基およびアリーロキシ基のいずれかであることが好ましい。

アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基については上記 R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub> および R<sub>d</sub> と同様である。

【0407】

R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub> および R<sub>d</sub> の置換基となるアリーロキシ基としては、総炭素数 6~18 のアリール基を有するものが好ましく、具体的には(o-,m-,p-)フェノキシ基等が挙げられる。

【0408】

group which is displayed with R<sub>a</sub>, R<sub>b</sub>, R<sub>c</sub> and R<sub>d</sub>.

[0403]

It is good whichever such as alkyl amino group, aryl amino group, aralkyl amino group as amino group which is displayed with R<sub>a</sub>, R<sub>b</sub>, R<sub>c</sub> and R<sub>d</sub>.

These have aromatic carbon ring of aliphatic, and/or 1~4 rings of total number of carbon atoms 1~6, it is desirable.

Concretely, you can list dimethylamino group, diethyl amino base and dibutyl amino group, diphenylamino group, ditolyl amino group, bis G phenyl amino group, bis naphthyl amino group etc.

[0404]

As heterocyclic group which is displayed with R<sub>a</sub>, R<sub>b</sub>, R<sub>c</sub> and R<sub>d</sub>, the O,N,S is contained as heteroatom 5 -member or 6-member ring where you can list heteroaromatic group, and condensed polycyclic fragrance heterocyclic group etc of carbon number 2~20.

As heteroaromatic group and condensed polycyclic fragrance heterocyclic group, you can list for example thienyl group, furyl group, pyrrolyl group, pyridyl group, quinolyl group, quinoxalyl group etc.

[0405]

(1 - And 2 -) phenyl alkenyl group, (1 and 2 -, and 2 and 2 -) biphenyl alkenyl group, (1, 2 and 2 -) triphenyl alkenyl group etc which at least possesses phenyl group in one of substituent as alkenyl group which is displayed with the R<sub>a</sub>, R<sub>b</sub>, R<sub>c</sub> and R<sub>d</sub>, is desirable, but it is good even with unsubstituted ones.

[0406]

When R<sub>a</sub>, R<sub>b</sub>, R<sub>c</sub> and R<sub>d</sub> have substituent, at least two among these substituent is any of aryl group, amino group, heterocyclic group, alkenyl group and aryloxy group, it is desirable.

It is similar to above-mentioned R<sub>a</sub>, R<sub>b</sub>, R<sub>c</sub> and R<sub>d</sub> concerning aryl group, amino group, heterocyclic group and alkenyl group.

[0407]

Those which possess aryl group of total number of carbon atoms 6~18 as aryloxy group which becomes substituent of R<sub>a</sub>, R<sub>b</sub>, R<sub>c</sub> and R<sub>d</sub>, are desirable, can list (o-,m-, p-) phenoxy group etc concretely.

[0408]

これら置換基の2種以上が縮合環を形成していてもよい。

また、さらに置換されていてもよく、その場合の好ましい置換基としては上記と同様である。

【0409】

$R_a$ 、 $R_b$ 、 $R_c$  および  $R_d$  が置換基を有する場合、少なくともその2種以上が上記置換基を有することが好ましい。

その置換位置としては特に限定されるものではなく、メタ、パラ、オルト位のいずれでもよい。

また、 $R_a$  と  $R_d$ 、 $R_b$  と  $R_c$  はそれぞれ同じものであることが好ましいが、異なってもよい。

【0410】

$R_e$ 、 $R_f$ 、 $R_g$  および  $R_h$  は、それぞれ水素または置換基を有していてもよいアルキル基、アリール基、アミノ基およびアルケニル基のいずれかを表す。

【0411】

$R_e$ 、 $R_f$ 、 $R_g$  および  $R_h$  で表されるアルキル基としては、炭素数が1~6のものが好ましく、直鎖状であっても分岐を有していてもよい。

アルキル基の好ましい具体例としては、メチル基、エチル基、(n,i)-プロピル基、(n,i,sec,tert)-ブチル基、(n,i,neo,tert)-ペンチル基等が挙げられる。

【0412】

$R_e$ 、 $R_f$ 、 $R_g$  および  $R_h$  で表されるアリール基、アミノ基、アルケニル基としては、上記  $R_a$ 、 $R_b$ 、 $R_c$  および  $R_d$  の場合と同様である。

また、 $R_e$  と  $R_f$ 、 $R_g$  と  $R_h$  は、それぞれ同じものであることが好ましいが、異なってもよい。

【0413】

ただし、これらのうち、 $R_a$ 、 $R_b$ 、 $R_c$  および  $R_d$  がフェニル基であって、 $R_e$ 、 $R_f$ 、 $R_g$  および  $R_h$  が水素であるものは含まれない。

【0414】

また、本発明で用いるナフタセン誘導体は、下記の式(9)で表される基本骨格を有するルブレン誘導体が好ましい。

【0415】

【化 143】

2 kinds or more of these substituent may form fused ring.

In addition, it is similar to description above furthermore in that case of optionally substitutable, as desirable substituent.

[0409]

When  $R_a$ 、 $R_b$ 、 $R_c$  and  $R_d$  have substituent, 2 kinds or more have the above-mentioned substituent at least, it is desirable.

As substituted position it is not something which especially is limited, it is good with whichever of meta、para、ortho position.

In addition,  $R_a$  and  $R_d$ 、 $R_b$  and  $R_c$  are respective same ones, it is desirable, but it is possible to differ.

[0410]

$R_e$ 、 $R_f$ 、 $R_g$  and  $R_h$  display any of respective hydrogen or optionally substituted alkyl group、aryl group、amino group and alkenyl group.

[0411]

carbon number thing 1 - 6 is desirable as alkyl group which is displayed with  $R_e$ 、 $R_f$ 、 $R_g$  and  $R_h$ , is possible to have possessed branch even with straight chain.

methyl group、ethyl group、(n,i)-propyl group、(n,i,s,t)-butyl group、(n,i,neo,t) you can list -pentyl group etc as embodiment where alkyl group is desirable.

[0412]

It is similar to above-mentioned  $R_a$ 、 $R_b$ 、 $R_c$  and case of  $R_d$  as aryl group、amino group、alkenyl group which is displayed with  $R_e$ 、 $R_f$ 、 $R_g$  and  $R_h$ .

In addition,  $R_e$  and  $R_f$ 、 $R_g$  and  $R_h$  are respective same ones, it is desirable, but it is possible to differ.

[0413]

However, among these,  $R_a$ 、 $R_b$ 、 $R_c$  and  $R_d$  being phenyl group, those where  $R_e$ 、 $R_f$ 、 $R_g$  and  $R_h$  are hydrogen are not included.

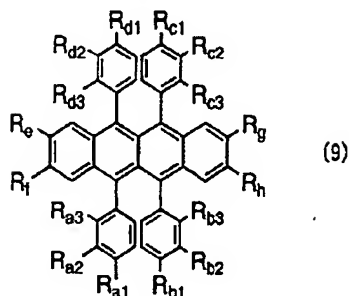
[0414]

In addition, as for naphthacene derivative which is used with this invention, rubrene derivative which possesses basic framework which is displayed with the below-mentioned Formula (9) is desirable.

[0415]

[Chemical Formula 143]





【0416】

上記式(9)中、 $R_{a1} \sim R_{a3}$ 、 $R_{b1} \sim R_{b3}$ 、 $R_{c1} \sim R_{c3}$  および  $R_{d1} \sim R_{d3}$  は水素、アリール基、アミノ基、複素環基、アリーロキシ基およびアルケニル基のいずれかである。

また、これらのうちの少なくとも1群中にはアリール基、アミノ基、複素環基およびアリーロキシ基のいずれかを置換基として有することが好ましい。

これらの2種類以上が縮合環を形成していてもよい。

あるいは、これらの全てが水素である場合には  $R_e, R_f, R_g$  および  $R_h$  のいずれかにはアルキル基、またはアリール基を有することが好ましい。

【0417】

アリール基、アミノ基、複素環基およびアリーロキシ基の好ましい態様としては上記  $R_a, R_b, R_c$  および  $R_d$  と同様である。

また、 $R_{a1} \sim R_{a3}$  と  $R_{d1} \sim R_{d3}$ 、 $R_{b1} \sim R_{b3}$  と  $R_{c1} \sim R_{c3}$  は、それぞれ同じであることが好ましいが、異なってもよい。

【0418】

$R_{a1} \sim R_{a3}$ 、 $R_{b1} \sim R_{b3}$ 、 $R_{c1} \sim R_{c3}$  および  $R_{d1} \sim R_{d3}$  の置換基となるアミノ基としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、アラルキルアミノ基等いずれでもよい。

これらは、総炭素数 1~6 の脂肪族、および/または 1~4 環の芳香族炭素環を有することが好ましい。

具体的には、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ビスビフェニルアミノ基等が挙げられる。

【0419】

形成される縮合環としては、例えばインデン、ナ

【0416】

In above Formula (9),  $R_{a1} \sim R_{a3}$ ,  $R_{b1} \sim R_{b3}$ ,  $R_{c1} \sim R_{c3}$  and  $R_{d1} \sim R_{d3}$  are any of hydrogen, aryl group, amino group, heterocyclic group, aryloxy group and alkenyl group.

In addition, it possesses any of aryl group, amino group, heterocyclic group and aryloxy group atleast in 1 set among these as substituent it is desirable.

These 2 kinds or more may form fused ring.

Or, when these all are hydrogen, it possesses alkyl group, or the aryl group in any of  $R_e, R_f, R_g$  and  $R_h$ , it is desirable.

【0417】

It is similar to above-mentioned  $R_a, R_b, R_c$  and  $R_d$  as embodiment where aryl group, amino group, heterocyclic group and aryloxy group are desirable.

In addition,  $R_{a1} \sim R_{a3}$  and  $R_{d1} \sim R_{d3}$ ,  $R_{b1} \sim R_{b3}$  and  $R_{c1} \sim R_{c3}$  are samerespectively, it is desirable, but it is possible to differ.

【0418】

It is good whichever such as alkyl amino group, aryl amino group, aralkyl amino group as amino group which becomes the substituent of  $R_{a1} \sim R_{a3}$ ,  $R_{b1} \sim R_{b3}$ ,  $R_{c1} \sim R_{c3}$  and  $R_{d1} \sim R_{d3}$ .

These have aromatic carbon ring of aliphatic, and/or 1~4 rings of total number of carbon atoms 1~6, it is desirable.

Concretely, you can list dimethylamino group, diethyl amino base and dibutyl amino group, diphenylamino group, ditolyl amino group, bis biphenyl amino group etc.

【0419】

for example indene, naphthalene, anthracene,

フタレン、アントラセン、フェナントレン、キノリン、イソキノリン、キノキサリン、フェナジン、アクリジン、インドール、カルバゾール、フェノキサジン、フェノチアジン、ベンゾチアゾール、ベンゾチオフェン、ベンゾフラン、アクリドン、ベンズイミダゾール、クマリン、フラボン等を挙げることができる。

【0420】

特に好適なルブレン等のナフタセン誘導体を以下に示す。

なお、化 144~化 147 では化 142、式(8)の  $R_a \sim R_h$  の表示を用いて示している。

【0421】

【化 144】

phenanthrene、quinoline、isoquinoline、quino chain ン and phenazine、acridine、indole、carbazole、phenoxazine、phenothiazine、benzothiazole、benzothiophene、benzofuran、acridone、benzimidazole、coumarin、flavone etc can be listed as fused ring which is formed.







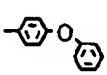
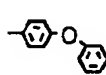






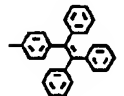
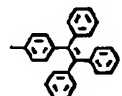
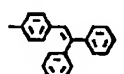
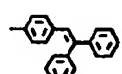
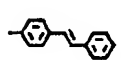
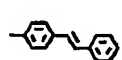




[0420]

Especially preferred rubrene or other naphthacene derivative is shown below.

Furthermore, with Chemical Formula 14 4~Chemical Formula 14 7 it has shown making use of indication of  $R_a \sim R_h$  of Chemical Formula 14 2、Formula (8).

[0421]

[Chemical Formula 144]

















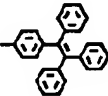
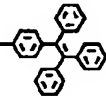
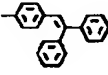
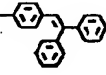
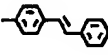
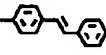








No.	R <sub>a</sub>	R <sub>b</sub>	R <sub>c</sub>	R <sub>d</sub>	R <sub>e</sub>	R <sub>f</sub>	R <sub>g</sub>	R <sub>h</sub>
1	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
2		-H	-H		-H	-H	-H	-H
3		-H	-H		-H	-H	-H	-H
4		-H	-H		-H	-H	-H	-H
5		-H	-H		-H	-H	-H	-H
6		-H	-H		-H	-H	-H	-H
7		-H	-H		-H	-H	-H	-H
8		-H	-H		-H	-H	-H	-H
9		-H	-H		-H	-H	-H	-H
10		-H	-H		-H	-H	-H	-H
11		-H	-H		-H	-H	-H	-H
12		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>
13		-H	-H		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>

【0422】

【化 145】

[0422]

[Chemical Formula 145]

















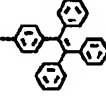
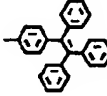
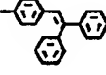
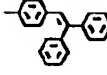
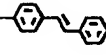
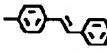








No.	R <sub>a</sub>	R <sub>b</sub>	R <sub>c</sub>	R <sub>d</sub>	R <sub>e</sub>	R <sub>f</sub>	R <sub>g</sub>	R <sub>h</sub>
14	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H
15		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
16					-H	-H	-H	-H
17		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
18					-H	-H	-H	-H
19		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
20		-Ph	-Ph		-H	-H	-H	-H
21		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
22		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
23		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
24					-H	-H	-H	-H
25					-H	-H	-H	-H

[0423]

[化 146]

[0423]

[Chemical Formula 146]













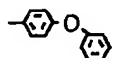
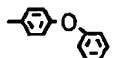


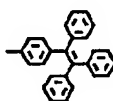
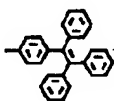
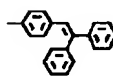
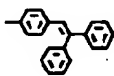

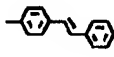








No.	R <sub>a</sub>	R <sub>b</sub>	R <sub>c</sub>	R <sub>d</sub>	R <sub>e</sub>	R <sub>f</sub>	R <sub>g</sub>	R <sub>h</sub>
26	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
27		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
28					-Ph	-Ph	-H	-H
29		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
30					-Ph	-Ph	-H	-H
31		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
32		-Ph	-Ph		-Ph	-Ph	-H	-H
33		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
34		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
35		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
36					-Ph	-Ph	-H	-H
37					-Ph	-Ph	-H	-H

【0424】

【化 147】

[0424]

[Chemical Formula 147]

No.	R <sub>a</sub>	R <sub>b</sub>	R <sub>c</sub>	R <sub>d</sub>	R <sub>e</sub>	R <sub>f</sub>	R <sub>g</sub>	R <sub>h</sub>
38	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
39		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
40					-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
41		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
42					-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
43		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
44		-Ph	-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
45		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
46		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
47		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
48					-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
49					-Ph	-Ph	-Ph	-Ph

[0425]

これらの中でも、No.2、3、4、11、12、15、20、24、27、44 のナフタセン誘導体が好ましい。

[0426]

ナフタセン誘導体は、特開平 8-311442 号公報、PCT-JP-02869 号明細書、特願平 10-137505 号公報等に従って合成すればよい。

[0427]

前述したように、蛍光性物質は、それ自体で発光が可能なホスト物質と組み合わせて使用することが好ましく、ドーパントとしての使用が好ましい。

[0425]

naphthalene derivative of No. 2, 3, 4, 11, 12, 15, 20, 24, 27, 44 is desirable even among these.

[0426]

If following to Japan Unexamined Patent Publication Hei 8-31 1442 disclosure, PCT-JP-02869 specification, Japan Patent Application Hei 10-137505 disclosure, etc it should have synthesized naphthalene derivative.

[0427]

As mentioned earlier, uses fluorescence substance, combining with host substance where light emitting is possible with that itself to be desirable, use as dopant is desirable.

このような場合の発光層における蛍光性物質の含有量は 0.01~50wt%、さらには 0.01~20wt% であることが好ましい。

なお、本発明で用いる上記のテトラアリールフェニレンジアミン誘導体および上記のポリチオフェン、チオフェン誘導体は、それ自体で発光が可能なホスト物質として機能する。

【0428】

電子注入輸送層は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、電子を輸送する機能および正孔を妨げる機能を有するものである。

電子注入輸送層は、発光層へ注入される電子を増大・閉じ込めさせ、再結合領域を最適化させ、発光効率を改善する。

電子注入輸送層は、発光層に用いる化合物の電子注入、電子輸送の各機能の高さを考慮し、必要に応じて設けられる。

発光層に用いる化合物の電子注入輸送機能が高い場合には、電子注入輸送層を設けずに、発光層が電子注入輸送層を兼ねる構成とすることができる。

また、電子注入輸送層は、注入機能を持つ層と輸送機能を持つ層とに別個に設けてもよい。

【0429】

電子注入輸送層には、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(AlQ3)等の 8-キノリノールないしその誘導体を配位子とする有機金属錯体などのキノリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ペリレン誘導体、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体等を用いることができる。

特にトリス(8-キノリノラト)アルミニウム(AlQ3)等を使用することが好ましい。

【0430】

電子注入輸送層を電子注入層と電子輸送層とに分けて設ける場合は、電子注入輸送層用の化合物の中から好ましい組合せを選択して用いることができる。

このとき、陰極側から電子親和力の大きい化合物を優先的に用いることが好ましい。

content of fluorescence substance in luminescent layer in this kind of case 0.01 - 50 wt%、furthermore is 0.01 - 20 wt%、it is desirable.

Furthermore, above-mentioned tetra aryl phenylenediamine derivative and above-mentioned polythiophene、thiophene derivative which are used with this invention function as host substance where light emitting is possible with that itself.

【0428】

<electron-implanted transport layer>electron-implanted transport layer is something which possesses function, function which transports electron and obstructs positive hole function which make fill of electron from cathode easy.

electron-implanted transport layer, is filled increase \* doing to shut in electron which to luminescent layer, optimization doing recombination territory, improves light emission efficiency.

electron-implanted transport layer considers height of each function of electron implantation、electron transport of the compound which is used for luminescent layer, according to need is provided.

When electron-implanted transport function of compound which is used for luminescent layer is high, without providing electron-implanted transport layer, it can make constitution where the luminescent layer combines electron-implanted transport layer.

In addition, it is possible to provide electron-implanted transport layer, separately with a layer which has injection function and layer which has transport function.

【0429】

organometallic complex or other quinoline derivative、oxadiazole derivative、perylene derivative、pyridine derivative、pyrimidine derivative、quinoxaline derivative、biphenyl quinones derivative、nitro substituted fluorene derivative etc which designates tris (8 -quinolinolato ) aluminum (AlQ 3 ) or other 8-quinolinol or the its derivative as ligand can be used to electron-implanted transport layer .

Uses especially tris (8 -quinolinolato ) aluminum (AlQ 3 ) etc is desirable.

【0430】

Dividing electron-implanted transport layer with into electron-injecting layer and electron transport layer, when facilities layer it does, selecting desirable combination from midst of the compound for electron-implanted transport layer, you can use.

This time, it laminates in order of compound where electron

物の順に積層することが好ましく、陰極に接して電子注入層、発光層に接して電子輸送層を設けることが好ましい。

電子親和力と積層順との関係については、電子注入輸送層を 2 層以上設けるときの同様である。

[0431]

発光層の厚さおよび電子注入輸送層の厚さは特に限定されず、再結合領域・発光領域の設計や形成方法によっても異なるが、通常、5~1000nm 程度、特に 10~200nm とすることが好ましい。

[0432]

電子注入輸送層の厚さは、再結合・発光領域の設計にもよるが、発光層の厚さと同程度もしくは 1/10~10 倍程度とすればよい。

電子の注入層と輸送層とを分ける場合は、注入層は 1nm 以上、輸送層は 20nm 以上とするのが好ましい。

このときの注入層、輸送層の厚さの上限は、通常、注入層で 100nm 程度、輸送層で 1000nm 程度である。

このような膜厚については、注入輸送層を 2 層設けるときの同じである。

[0433]

また、組み合わせる発光層や電子注入輸送層のキャリア移動度やキャリア密度(イオン化ポテンシャル・電子親和力により決まる)を考慮し、膜厚をコントロールすることで、再結合領域・発光領域を自由に設計することができ、発光色の設計や、両電極の干渉効果による発光輝度・発光スペクトルの制御や、発光の空間分布の制御を可能にできる。

[0434]

本発明において、陰極には、仕事関数の小さい材料、例えば、Li、Na、K、Mg、Al、Ag、In、あるいは、これらの 1 種以上を含む合金を用いることが好ましい。

特に、これらの酸化物、ハロゲン化物を界面に数 nm 以下積層し、Al 等の配線電極を用いることが好ましい。

affinity is large from cathode side to be desirable, touching to cathode, touching to electron-injecting layer, luminescent layer, it provides electron transport layer, it is desirable.

Concerning relationship between electron affinity and lamination sequence, when 2 layers or more providing electron-implanted transport layer, it is similar.

[0431]

<luminescent layer, electron-implanted transport layer thickness of film thickness> luminescent layer or thickness of electron-implanted transport layer especially are not limited, differ even in design and formation method of recombination territory \* light emitting domain, but usually, it makes 5 - 1000 nm extent, especially 10 - 200 nm, it is desirable.

[0432]

thickness of electron-implanted transport layer is due to also design of recombination \* light emitting domain, but the thickness and same extent or 1/10 - 10 times extent of luminescent layer it should have made.

When injection layer of electron and transport layer is divided, as for injection layer as for 1 nm or greater, transport layer it is desirable to make 20 nm or greater.

upper limit of thickness of injection layer, transport layer of this time, with usually, with injection layer is 1000 nm extent 100 nm extent, transport layer.

Concerning this kind of film thickness, when 2 layers providing implanted transport layer, it is same.

[0433]

In addition, it combines and considers degree of carrier movement of the luminescent layer and electron-implanted transport layer, and carrier mobility (It is decided by ionization potential \* electron affinity.) by fact that film thickness is controlled, it designs recombination territory \* light emitting domain freely it to be possible, with interference effect of design and both electrodes of emission color control of light emitting brightness \* light emitting spectrum and control of space distribution of light emitting can be made possible.

[0434]

Regarding to <cathode> this invention, material, for example Li, Na, K, Mg, Al, Ag, In, where work function is small or, it uses alloy which includes these one kind or more to cathode, it is desirable.

Especially, these oxide, halide below several nm are laminated in interface, Al or other metallized electrode is used, it is desirable.



特に好ましい材料としては、酸化リチウム、フッ化リチウム、フッ化カリウム、酸化カルシウム、塩化ナトリウム等のアルカリ金属、アルカリ土類金属の化合物が好ましい。

また、陰極は、結晶粒が細かいことが好ましく、特にアモルファス状態であることが好ましい。

陰極の厚さは 10~1000nm 程度とすることが好ましい。

【0435】

また、陰極界面の有機物層に Li 等の金属をドープしてもよい。

【0436】

また、電極形成の最後に Al や、フッ素系化合物を蒸着・スパッタすることで封止効果が向上する。

【0437】

有機 EL 素子を面発光させるためには、少なくとも一方の電極が透明ないし半透明である必要があり、上記のように陰極の材料には制限があるので、好ましくは発光光の透過率が 80%以上となるように陽極の材料および厚さを決定することが好ましい。

具体的には、例えば、ITO(錫ドープ酸化インジウム)、IZO(亜鉛ドープ酸化インジウム)、 $\text{SnO}_2$ 、Ni、Au、Pt、Pd、ドーパントをドープしたポリピロールなどを陽極に用いることが好ましく、特に ITO、IZO が好ましい。

ITO は、通常  $\text{In}_2\text{O}_3$  と  $\text{SnO}$  とを化学量論組成で含有するが、酸素量は多少これから偏倚していてもよい。

IZO は、通常  $\text{In}_2\text{O}_3$  と  $\text{ZnO}_2$  とを化学量論組成で含有するが、酸素量は多少これから偏倚していてもよい。

$\text{In}_2\text{O}_3$  に対する  $\text{SnO}_2$  の混合比は、1~20wt%、さらには 5~12wt% が好ましい。

また、IZO での  $\text{In}_2\text{O}_3$  に対する  $\text{ZnO}_2$  の混合比は、通常、12~32wt% 程度である。

また、陽極の厚さは 10~500nm 程度とすることが好ましい。

また、素子の信頼性を向上させるために駆動電圧が低いことが必要であるが、好ましいものとして 10~30  $\Omega/\square$  または 10  $\Omega/\square$  以下(通常 0.1~10  $\Omega/\square$ )の ITO が挙げられる。

Especially compound of lithium oxide、lithium fluoride、potassium fluoride、calcium oxide、sodium chloride or other alkali metal、alkaline earth metal is desirable as desirable material.

In addition, as for cathode, crystal grain is small, it is desirable, it is a especially amorphous state, it is desirable .

thickness of cathode makes 10 - 1000 nm extent, it is desirable .

[0435]

In addition, dope it is possible to organic layer of cathode interface to do Li or other metal.

[0436]

In addition, sealing effect improves lastly by Al of electrode formation and fact that fluorine type compound is done vapor deposition \* sputter.

[0437]

In order surface light emission to do <anode>organic electroluminescent element, it to be necessary for electrode of at least one to be transparent or semitransparent, as description above because there is restriction in material of cathode, in order for transmittance of the preferably emitted light to become 80% or more, decides material and thickness of the anode is desirable.

Concretely, for example ITO (tin dope indium oxide ), IZO (zinc dope indium oxide ), polypyrrole etc which dope does  $\text{SnO}_2$ 、Ni、Au、Pt、Pd、dopant is used for anode, it is desirable , the especially ITO、IZO is desirable.

ITO usually contains  $\text{In}_2\text{O}_3$  and  $\text{SnO}$  with chemically stoichiometric composition, but amount of oxygen has been allowed to have done deviation from some this.

IZO usually contains  $\text{In}_2\text{O}_3$  and  $\text{ZnO}_2$  with chemically stoichiometric composition, but amount of oxygen has been allowed to have done deviation from some this.

As for proportion of  $\text{SnO}_2$  for  $\text{In}_2\text{O}_3$  , 1 - 20 wt%、furthermore 5 - 12 wt% are desirable.

In addition, proportion of  $\text{ZnO}_2$  for  $\text{In}_2\text{O}_3$  with IZO, usually, is 12 - 32 wt% extent.

In addition, thickness of anode makes 10 - 500 nm extent, it is desirable .

In addition, drive voltage it is low in order to improve it is necessary 10 - 30  $\Omega/\square$  or ITO of 10  $\Omega/\square$  or below (Usually 0.1 - 10  $\Omega/\square$  ) can list the reliability of element, but as desirable ones.

【0438】

また、ディスプレイのような大きいデバイスにおいては、ITO の抵抗が大きくなるので Al 配線をしてよい。

【0439】

基板材料に特に制限はないが、図示例では基板側から発光光を取り出すため、ガラスや樹脂等の透明ないし半透明材料を用いる。

また、基板にカラーフィルター膜や蛍光性物質を含む蛍光変換フィルター膜、あるいは誘電体反射膜を用いたり、基板自身に着色したりして発光色をコントロールしてもよい。

【0440】

なお、基板に不透明な材料を用いる場合には、図 1 に示される積層順序を逆にしてもよい。

【0441】

カラーフィルター膜には、液晶ディスプレイ等で用いられているカラーフィルターを用いればよいが、有機 EL 素子の発光する光に合わせてカラーフィルターの特性を調整し、取り出し効率・色純度を最適化すればよい。

【0442】

また、EL 素子材料や蛍光変換層が光吸収するような短波長の外光をカットできるカラーフィルターを用いれば、素子の耐光性・表示のコントラストも向上する。

【0443】

また、誘電体多層膜のような光学薄膜を用いてカラーフィルターの代わりにしてもよい。

【0444】

蛍光変換フィルター膜は、EL 発光の光を吸収し、蛍光変換膜中の蛍光体から光を放出させることで、発光色の色変換を行うものであるが、組成としては、バインダー、蛍光材料、光吸収材料の三つから形成される。

【0445】

蛍光材料は、基本的には蛍光量子収率が高いものを用いればよく、EL 発光波長域に吸収が

【0438】

In addition, because resistance of ITO becomes large, regarding large device like display, it is possible to do Al metallization.

【0439】

There is not especially restriction in <substrate material> substrate material. In order with drawn example to remove emitted light from substrate side, glass and resin or other transparent or semitransparent material are used.

In addition, coloring to substrate itself making use of fluorescence conversion filter film, or the dielectric reflective film which includes color filter film and fluorescence substance in substrate, it is possible to control emission color.

【0440】

Furthermore, when opaque material is used for substrate, it is possible with lamination sequence beginning which is shown in Figure 1 as opposite.

【0441】

color filter which is used with liquid crystal display etc should have been used to color filter film ,, but light emitting of organic electroluminescent element adjusting to light which is done, you adjust characteristic of color filter and optimization should have done extraction efficiency \* color purity.

【0442】

In addition, electroluminescent element material and fluorescent conversion layer if color filter which cut outside light of short wavelength which light absorption is done is used, also the contrast of light resistance \* indication of element improves.

【0443】

In addition, it is possible to substituting color filter making use of optical thin film like dielectric multilayer film.

【0444】

but fluorescence conversion filter film absorbs light of EL light emitting, by fact that light is discharged from phosphor in fluorescence conversion film, it is something which does color conversion of emission color, is formed from three of binder, fluorescent material, light-absorbing material as the composition.

【0445】

If fluorescent material should have used those where fluorescence quantum yield is high to the basic, absorption

強いことが好ましい。

実際には、レーザー色素などが適しており、ローダミン系化合物・ペリレン系化合物・シアニン系化合物・フタロシアニン系化合物(サブフタロシアニン等も含む)・ナフタロイミド系化合物・縮合環炭化水素系化合物・縮合複素環系化合物・スチリル系化合物・クマリン系化合物等を用いればよい。

【0446】

バインダーは基本的に蛍光を消光しないような材料を選べばよく、フォトリソグラフィー・印刷等で微細なパターンニングができるようなものが好ましい。

また、ITO の成膜時にダメージを受けないような材料が好ましい。

【0447】

光吸収材料は、蛍光材料の光吸収が足りない場合に用いるが、必要のない場合は用いなくてもよい。

光吸収材料は、蛍光性材料の蛍光を消光しないような材料を選べばよい。

【0448】

次に、本発明の有機EL素子の製造方法を説明する。

【0449】

陽極は、蒸着法やスパッタ法等の気相成長法により形成することが好ましい。

【0450】

陰極は、蒸着法やスパッタ法で形成することが可能であるが、有機層上に成膜する点を考慮すると、有機層へのダメージの少ない蒸着法が好ましい。

【0451】

発光層および電子注入輸送層の形成には、均質な薄膜が形成できることから真空蒸着法を用いることが好ましい。

真空蒸着法を用いた場合、アモルファス状態または結晶粒径が  $0.1\mu\text{m}$  以下(通常、下限値は  $0.001\mu\text{m}$  程度である。)の均質な薄膜が得られる。

結晶粒径が  $0.1\mu\text{m}$  を超えていると、不均一な発光となり、素子の駆動電圧を高くしなければ

forces to EL light emitting wavelength region and is desirable .

laser dye etc is suitable for fact, rhodamine compound \* perylene type compound \* cyanine type compound \* phthalocyanine type compound (Also sub phthalocyanine etc includes. ) \* naphthaloimide compound \* fused ring hydrocarbon compound \* condensed heterocycle compound \* styryl compound \* coumarin compound etc should have been used.

[0446]

If binder, should have chosen kind of material which quenching does not do fluorescence in basic, those which can do microscopic patterning with photolithography \* printing etc are desirable.

In addition, kind of material which does not receive damage at the time of film formation of ITO is desirable.

[0447]

When light absorption of fluorescent material is not enough, it uses, light-absorbing material, but when there is not a necessity, it is not necessary to use.

light-absorbing material, kind of material which quenching does not do fluorescence of fluorescence material should have been chosen.

[0448]

<organic electroluminescent element manufacturing method> next, manufacturing method of organic electroluminescent element of this invention is explained.

[0449]

Forms anode, with vapor deposition method and sputtering method or other vapor phase deposition method is desirable.

[0450]

Forms cathode, is possible with vapor deposition method and sputtering method, but when point which film formation is made on organic layer is considered, the vapor deposition method where damage to organic layer is little is desirable.

[0451]

vacuum vapor deposition method is used to formation of luminescent layer and electron-implanted transport layer, from the fact that it can form uniform thin film, it is desirable .

When vacuum vapor deposition method is used, amorphous state or crystal grain diameter is acquired uniform thin film of  $0.1\mu\text{m}$  or less (Usually, lower limit is  $0.001\mu\text{m}$  extent. ).

When crystal grain diameter exceeds  $0.1\mu\text{m}$  , it becomes nonuniform light emitting and must make drive voltage of

ならなくなり、電荷の注入効率も著しく低下する。

【0452】

真空蒸着の条件は特に限定されないが、 $10^{-3}$ Pa以下の真空度とし、蒸着速度は0.1~1nm/sec程度とすることが好ましい。

また、真空中で連続して各層を形成することが好ましい。

真空中で連続して形成すれば、各層の界面に不純物が吸着することを防げるため、高特性が得られる。

また、素子の駆動電圧を低くしたり、ダークスポットの発生・成長を抑えたりすることができる。

【0453】

これら各層の形成に真空蒸着法を用いる場合において、混合層等、1層に複数の化合物を含有させる場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して異なる蒸着源より蒸発させる共蒸着が好ましいが、蒸気圧(蒸発温度)が同程度あるいは非常に近い場合には、予め同じ蒸着ボード内で混合させておき、蒸着することもできる。

【0454】

また、この他、溶液塗布法(スピンコート、ディップ、キャスト等)、ラングミュア・プロジェクト(LB)法などを用いることもできる。

溶液塗布法では、ポリマー等のマトリックス物質(樹脂バインダー)中に各化合物を分散させる構成としてもよい。

【0455】

本発明の有機EL素子は、通常、直流駆動型のEL素子として用いられるが、交流駆動またはパルス駆動することもできる。

印加電圧は、通常、2~10V程度と従来のものよりも低い。

【0456】

【実施例】

以下、本発明の実施例を示し、本発明をさらに詳細に説明する。

【0457】

element high it stops, also injection efficiency of electric charge decreases considerably.

[0452]

condition of vacuum vapor deposition especially is not limited.  $10^{-3}$ Pa or less it makes degree of vacuum, vapor deposition rate makes 0.1 - 1 nm/sec extent, it is undesirable.

In addition, continuing in vacuum, forms each layer is undesirable.

Continuing in vacuum, if it forms, because impurity adsorbs into interface of each layer and can prevent, high characteristic is acquired.

In addition, drive voltage of element is made low, generation and growth of the dark spot can be held down.

[0453]

When vacuum vapor deposition method is used for formation of these each layers, putting, when such as mixed layer inserted compound, it contains compound of the plural in 1 layer, each temperature control doing boat which individually, the codeposition which evaporates is desirable from vapor deposition source which differs, but when vapor pressure (vaporization temperature) same extent or it is very close, it mixes beforehand inside same vapor deposition board, vapor deposition it is possible also to do.

[0454]

In addition, in addition, solution coating method (spin coating, dip, cast etc), it is possible also to use Langmuir \* Blodgett (LB) method etc.

With solution coating method, it is possible as constitution which disperses each compound in polymer or other matrix substance (resin binder).

[0455]

organic electroluminescent element of this invention can also do, it is used usually, as electroluminescent element of direct current drive type but, alternating current drive or pulse drive.

applied voltage is low usually, in comparison with 2 - 10 V extent and conventional ones.

[0456]

[Working Example(s)]

Below, Working Example of this invention is shown, this invention is explained furthermore in detail.

[0457]

<Working Example 1>

ガラス基板上に、ITO 透明電極(陽極)をスパッタ法にて 100nm 成膜した。

【0458】

そして、ITO 透明電極を成膜したガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。

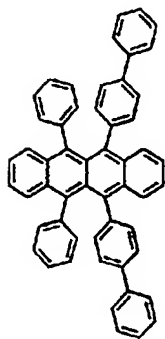
その基板を煮沸エタノール中から引き上げて乾燥し、UV/O<sub>3</sub> 洗浄した後、真空蒸着装置の基板ホルダーに固定して、真空槽を  $1 \times 10^{-4}$  Pa 以下まで減圧した。

【0459】

まず、上記の N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[N-フェニル-N-4-トリル(4-アミノフェニル)]ベンジジン(HIM34)と、発光中心として下記のルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 100nm の厚さに蒸着し、発光層とした。

【0460】

【化 148】



ルブレン誘導体

【0461】

次いで、下記のトリス(8-キノリノラト)アルミニウム(AlQ3)を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0462】

【化 149】

On glass substrate, ITO transparent electrode (anode ) 100 nm film formation was done with sputtering method .

【0458】

ultrasonic cleaning it did and, glass substrate which film formation does ITO transparent electrode, making use of neutral detergent、acetone、ethanol.

Pulling up substrate from in boiling ethanol, it dried, UV/O<sub>3</sub> afterwashing, it locked in substrate holder of vacuum vapor deposition equipment, vacuum did vacuum chamber to  $1 \times 10^{-4}$  Pa or less.

【0459】

First, with weight ratio 90:10、vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated below-mentioned rubrene derivative as thickness of 100 nm above-mentioned N,N'-biphenyl-N,N'-bis [N- phenyl-N- 4- tolyl (4 -amino phenyl )] benzidine (HIM34 )with, as light emitting center, made luminescent layer.

【0460】

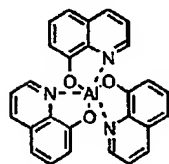
[Chemical Formula 148]

【0461】

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated below-mentioned tris (8 -quinolinolato ) aluminum (AlQ 3 ) as thickness of 20 nm, made electron-implanted transport layer.

【0462】

[Chemical Formula 149]

AlQ<sub>3</sub>

【0463】

さらに、減圧を保ったまま、Li<sub>2</sub>O を蒸着速度 0.05nm/sec で、0.5nm の厚さに蒸着して陰極とした。

【0464】

そして、配線電極兼保護層として Al を 200nm 蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0465】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は 4.03V、輝度は 405cd/m<sup>2</sup> であった。

発光色は黄橙色であった。

さらに、この素子を 50mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で連続駆動させたところ、初期の輝度は 1800cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧は 5.8V であり、500 時間後には輝度は 1500cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧は 8.2V となった。

【0466】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0467】

まず、上記の N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[N-フェニル-N-4-トリル(4-アミノフェニル)]ベンジジン(HIM34)と、発光中心となる上記のルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 80nm の厚さに共蒸着し、第一の発光層とした。

【0468】

次いで、N,N,N',N'-テトラキス(3-ビフェニリル)ベンジジン(化合物 No.1-1)と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに共蒸着し、第二の発光層とした。

【0463】

Furthermore, while vacuum is maintained, with vapor deposition rate 0.05 nm/sec, vapor deposition designating Li<sub>2</sub>O as thickness of 0.5 nm, it made cathode.

【0464】

Al 200 nm vapor deposition was done and, as metallized electrode and protective layer, the organic electroluminescent element was acquired.

【0465】

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup>, as for drive voltage as for 4.03 V, brightness they were 405 cd/m<sup>2</sup>.

emission color was yellow amber color.

Furthermore, this element at constant current density of 50 mA/cm<sup>2</sup> when continuous drive it does, as for brightness of initial stage as for 1800 cd/m<sup>2</sup>, drive voltage with 5.8 V, as for brightness as for 1500 cd/m<sup>2</sup>, drive voltage it became 8.2 V 500 hour later.

【0466】

<Working Example 2>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

【0467】

First, above-mentioned N,N'-biphenyl-N,N'-bis [N-phenyl-N-4-tolyl (4-amino phenyl)] benzidine (HIM34) with, with weight ratio 90:10, vapor deposition rate 0.2 nm/sec the codeposition it designated above-mentioned rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of 80 nm; made luminescent layer of first.

【0468】

Next, N,N,N',N'-tetrakis (3-biphenyl) benzidine (compound No.1-1) with, with weight ratio 90:10, vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of 20 nm, made second luminescent layer.

【0469】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0470】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0471】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は 4.4V、輝度は 617cd/m<sup>2</sup> であった。

発光色は黄橙色であった。

さらに、この素子を 50mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で連続駆動させたところ、初期の輝度は 3320cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧は 5.95V であり、500 時間後には輝度は 2710cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧は 9.4V となった。

【0472】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0473】

まず、上記の N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[N-フェニル-N-1-ナフチル(4-アミノフェニル)]ベンジジン(HIM38)と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 80nm の厚さに共蒸着し、第一の発光層とした。

【0474】

次いで、N,N,N',N'-テトラキス(3-ビフェニリル)ベンジジン(化合物 No.1-1)と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに共蒸着し、第二の発光層とした。

【0475】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 35nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0476】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0469】

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made electron-implanted transport layer.

【0470】

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、 Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

【0471】

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup>, as for drive voltage as for 4.4 V、 brightness they were 617 cd/m<sup>2</sup>.

emission color was yellow amber color.

Furthermore, this element at constant current density of 50 mA/cm<sup>2</sup> when continuous drive itdoes, as for brightness of initial stage as for 3320 cd/m<sup>2</sup>、 drive voltage with 5.95 V,as for brightness as for 2710 cd/m<sup>2</sup>、 drive voltage it became 9.4 V 500 hour later.

【0472】

<Working Example 3>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode ) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

【0473】

First, above-mentioned N,N'-biphenyl-N,N'-bis [N- phenyl-N-1-naphthyl (4 -amino phenyl )] benzidine (HIM38 ) with, with weight ratio 90:10、 vapor deposition rate 0.2 nm/sec the codeposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of 80 nm, made luminescent layer of first.

【0474】

Next, N,N, N'&apos;, N'&apos;-tetrakis (3 -biphenyl ) benzidine (compound No.1-1 ) with, with weight ratio 90:10、 vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition itdesignated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of 20 nm,made second luminescent layer.

【0475】

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 35 nm, made electron-implanted transport layer.

【0476】

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、 Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent

有機 EL 素子を得た。

【0477】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は  $5.4\text{V}$ 、輝度は  $760\text{cd}/\text{m}^2$  であった。

発光色は黄橙色であった。

さらに、この素子を  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させたところ、初期の輝度は  $3250\text{cd}/\text{m}^2$ 、駆動電圧は  $6.43\text{V}$  であり、500 時間後には輝度は  $2340\text{cd}/\text{m}^2$ 、駆動電圧は  $8.7\text{V}$  となった。

【0478】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0479】

まず、上記の N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[N-フェニル-N-4-トリル(4-アミノフェニル)]ベンジジン(HIM34)と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $80\text{nm}$  の厚さに共蒸着し、第一の発光層とした。

【0480】

次いで、N,N,N',N'-テトラキス(3-ピフェニリル)ベンジジン(化合物 No.I-1)と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $20\text{nm}$  の厚さに共蒸着し、第二の発光層とした。

【0481】

次いで、AlQ3 を蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $50\text{nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0482】

そして、実施例 1 と同様に、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0483】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は  $5.6\text{V}$ 、輝度は  $857\text{cd}/\text{m}^2$  であった。

element was acquired.

[0477]

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of  $10\text{mA}/\text{cm}^2$ , as for drive voltage as for  $5.4\text{V}$ , brightness they were  $760\text{cd}/\text{m}^2$ .

emission color was yellow amber color.

Furthermore, this element at constant current density of  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  when continuous drive it does, as for brightness of initial stage as for  $3250\text{cd}/\text{m}^2$ , drive voltage with  $6.43\text{V}$ , as for brightness as for  $2340\text{cd}/\text{m}^2$ , drive voltage it became  $8.7\text{V}$  500 hour later.

[0478]

<Working Example 4>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

[0479]

First, above-mentioned N,N'-biphenyl-N,N'-bis [N-phenyl-N-4-tolyl (4-amino phenyl)] benzidine (HIM34) with, with weight ratio 90:10, vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  the codeposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of  $80\text{nm}$ , made luminescent layer of first.

[0480]

Next, N,N,N',N'-tetrakis (3-biphenyl) benzidine (compound No.I-1) with, with weight ratio 90:10, vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  codeposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of  $20\text{nm}$ , made second luminescent layer.

[0481]

Next, with vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of  $50\text{nm}$ , made electron-implanted transport layer.

[0482]

And, in same way as Working Example 1,  $\text{Li}_2\text{O}$ , Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

[0483]

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of  $10\text{mA}/\text{cm}^2$ , as for drive voltage as for  $5.6\text{V}$ , brightness they were  $857\text{cd}/\text{m}^2$ .



発光色は黄橙色であった。

さらに、この素子を 50mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で連続駆動させたところ、初期の輝度は 3640cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧は 7.7V であり、1000 時間後には輝度は 3040cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧は 12.2V となった。

【0484】

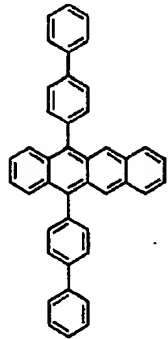
実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0485】

まず、上記の N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[N-フェニル-N-1-ナフチル(4-アミノフェニル)]ベンジジン(HIM38)と、発光中心として下記のナフタセン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 80nm の厚さに共蒸着し、第一の発光層とした。

【0486】

【化 150】



ナフタセン誘導体

【0487】

次いで、N,N,N',N'-テトラキス(3-ビフェニリル)ベンジジン(化合物 No.1-1)と、発光中心となるナフタセン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに共蒸着し、第二の発光層とした。

【0488】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0489】

emission color was yellow amber color.

Furthermore, this element at constant current density of 50 mA/cm<sup>2</sup> when continuous drive it does, as for brightness of initial stage as for 3640 cd/m<sup>2</sup>、drive voltage with 7.7 V, as for brightness as for 3040 cd/m<sup>2</sup>、drive voltage it became 12.2 V 1,000 hour later.

【0484】

<Working Example 5>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

【0485】

First, with weight ratio 90:10、vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition it designated below-mentioned naphthalene derivative as thickness of 80 nm above-mentioned N,N'-biphenyl-N,N'-bis [N-phenyl-N-1-naphthyl (4-amino phenyl)] benzidine (HIM38) with, as light emitting center, made luminescent layer of first.

【0486】

[Chemical Formula 150]

【0487】

Next, N,N,N',N'-tetrakis (3-biphenyl) benzidine (compound No.1-1) with, with weight ratio 90:10、vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition it designated naphthalene derivative which becomes light emitting center as thickness of 20 nm, made second luminescent layer.

【0488】

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made electron-implanted transport layer.

【0489】

そして、実施例 1 と同様に、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0490】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は  $4.5\text{V}$ 、輝度は  $557\text{cd}/\text{m}^2$  であった。

発光色は緑色であった。

さらに、この素子を  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させたところ、初期の輝度は  $2950\text{cd}/\text{m}^2$ 、駆動電圧は  $5.90\text{V}$  であり、500 時間後には輝度は  $2200\text{cd}/\text{m}^2$ 、駆動電圧は  $8.4\text{V}$  となった。

【0491】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0492】

まず、上記の N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[N-フェニル-N-4-トリル(4-アミノフェニル)]ベンジジン(HIM34)と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $80\text{nm}$  の厚さに共蒸着し、第一の発光層とした。

【0493】

次いで、N,N,N',N'-テトラキス(3-ビフェニリル)ベンジジン(化合物 No.1-1)と、発光中心となるナフタセン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $20\text{nm}$  の厚さに共蒸着し、第二の発光層とした。

【0494】

次いで、AlQ3 を蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $20\text{nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0495】

そして、実施例 1 と同様に、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0496】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は  $4.6\text{V}$ 、輝度は  $580\text{cd}/\text{m}^2$  であった。

And, in same way as Working Example 1,  $\text{Li}_2\text{O}$ 、Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

[0490]

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of  $10\text{mA}/\text{cm}^2$ , as for drive voltage as for  $4.5\text{V}$ , brightness they were  $557\text{cd}/\text{m}^2$ .

emission color was green color.

Furthermore, this element at constant current density of  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  when continuous drive it does, as for brightness of initial stage as for  $2950\text{cd}/\text{m}^2$ , drive voltage with  $5.90\text{V}$ , as for brightness as for  $2200\text{cd}/\text{m}^2$ , drive voltage it became  $8.4\text{V}$  500 hour later.

[0491]

<Working Example 6>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

[0492]

First, above-mentioned N,N'-biphenyl-N,N'-bis [N-phenyl-N-4-tolyl (4-amino phenyl)] benzidine (HIM34) with, with weight ratio 90:10, vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  the codeposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of  $80\text{nm}$ , made luminescent layer of first.

[0493]

Next, N,N,N',N'-tetrakis (3-biphenyl) benzidine (compound No.1-1) with, with weight ratio 90:10, vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  codeposition it designated naphthacene derivative which becomes light emitting center as thickness of  $20\text{nm}$ , made second luminescent layer.

[0494]

Next, with vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of  $20\text{nm}$ , made electron-implanted transport layer.

[0495]

And, in same way as Working Example 1,  $\text{Li}_2\text{O}$ 、Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

[0496]

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of  $10\text{mA}/\text{cm}^2$ , as for drive voltage as for  $4.6\text{V}$ , brightness they were  $580\text{cd}/\text{m}^2$ .

発光色は黄白色であった。

さらに、この素子を  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させたところ、初期の輝度は  $3010\text{cd}/\text{m}^2$ 、駆動電圧は  $5.80\text{V}$  であり、500 時間後には輝度は  $2380\text{cd}/\text{m}^2$ 、駆動電圧は  $8.4\text{V}$  となった。

【0497】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0498】

まず、上記の重合体 I-1[ポリ(チオフェン-2,4-ジイル)]と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $100\text{nm}$  の厚さに蒸着し、発光層とした。

【0499】

次いで、AlQ3 を蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $20\text{nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0500】

そして、実施例 1 と同様に、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0501】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は  $5.5\text{V}$ 、輝度は  $305\text{cd}/\text{m}^2$  であった。

また、この素子は、比較例のものよりも駆動電圧の上昇、輝度の低下が小さく、実施例 1~7 と同等の寿命が得られた。

【0502】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0503】

まず、上記の重合体 III -1[ポリ(チオフェン-2,5-ジイル)]と、発光中心となるルブレン誘導体とを

they were  $580\text{cd}/\text{m}^2$ .

emission color was yellowish white.

Furthermore, this element at constant current density of  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  when continuous drive it does, as for brightness of initial stage as for  $3010\text{cd}/\text{m}^2$ 、drive voltage with  $5.80\text{V}$ 、as for brightness as for  $2380\text{cd}/\text{m}^2$ 、drive voltage it became  $8.4\text{V}$  500 hour later.

【0497】

<Working Example 7>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

【0498】

First, above-mentioned polymer I-1 [poly (thiophene-2, 4- di yl)] with, with weight ratio 90:10、vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  vapor deposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of  $100\text{nm}$ 、made luminescent layer.

【0499】

Next, with vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of  $20\text{nm}$ 、made electron-implanted transport layer.

【0500】

And, in same way as Working Example 1,  $\text{Li}_2\text{O}$ 、Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

【0501】

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of  $10\text{mA}/\text{cm}^2$ 、as for drive voltage as for  $5.5\text{V}$ 、brightness they were  $305\text{cd}/\text{m}^2$ .

In addition, this element, rise of drive voltage and decrease of brightness are small in comparison with those of Comparative Example, lifetime which is equal to Working Example 1~7 acquired.

【0502】

<Working Example 8>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

【0503】

First, above-mentioned polymer III -1 [poly (thiophene-2,5-di yl)] with, with weight ratio 90:10、vapor deposition rate  $0.2$

重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 100nm の厚さに蒸着し、発光層とした。

【0504】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0505】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0506】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は 4.3V、輝度は 100cd/m<sup>2</sup> であった。

また、この素子は、比較例のものよりも駆動電圧の上昇、輝度の低下が小さく、実施例 1~7 と同等の寿命が得られた。

【0507】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0508】

まず、上記の共重合体 II-1[チオフェン-2,4-ジイル-チオフェン-2,5-ジイル(1:1)共重合体]と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 100nm の厚さに蒸着し、発光層とした。

【0509】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0510】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0511】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は 4.5V、輝度は 120cd/m<sup>2</sup> であった。

nm/sec vapor deposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of 100 nm, made luminescent layer.

[0504]

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made electron-implanted transport layer.

[0505]

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

[0506]

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup>, as for drive voltage as for 4.3 V、brightness they were 100 cd/m<sup>2</sup>.

In addition, this element, rise of drive voltage and decrease of brightness are small in comparison with those of Comparative Example, lifetime which is equal to Working Example 1~7 acquired.

[0507]

<Working Example 9>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

[0508]

First, above-mentioned copolymer II-1 [thiophene-2, 4- di yl-thiophene-2,5-di yl (1: 1) copolymer] with, with weight ratio 90:10、vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of 100 nm, made luminescent layer.

[0509]

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made electron-implanted transport layer.

[0510]

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

[0511]

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup>, as for drive voltage as for 4.5 V、brightness

駆動電圧は 4.5V、輝度は 120cd/m<sup>2</sup>であった。

また、この素子は、比較例のものよりも駆動電圧の上昇、輝度の低下が小さく、実施例 1~7 と同等の寿命が得られた。

【0512】

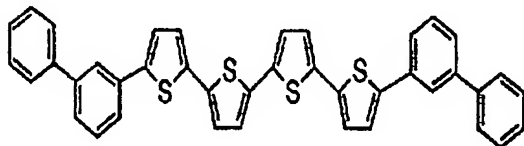
実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0513】

まず、下記の化合物と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 100nm の厚さに蒸着し、発光層とした。

【0514】

【化 151】



【0515】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0516】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0517】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は 4.5V、輝度は 400cd/m<sup>2</sup>であった。

また、この素子は、比較例のものよりも駆動電圧の上昇、輝度の低下が小さく、実施例 1~7 と同等の寿命が得られた。

【0518】

they were 120 cd/m<sup>2</sup>.

In addition, this element, rise of drive voltage and decrease of brightness are small in comparison with those of Comparative Example, lifetime which is equal to Working Example 1~7 acquired.

【0512】

<Working Example 10>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

【0513】

First, with weight ratio 90:10, vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated rubrene derivative which becomes below-mentioned compound and light emitting center as thickness of 100 nm, made luminescent layer.

【0514】

[Chemical Formula 151]

【0515】

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made electron-implanted transport layer.

【0516】

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

【0517】

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup>, as for drive voltage as for 4.5 V、brightness they were 400 cd/m<sup>2</sup>.

In addition, this element, rise of drive voltage and decrease of brightness are small in comparison with those of Comparative Example, lifetime which is equal to Working Example 1~7 acquired.

【0518】

<Working Example 11>

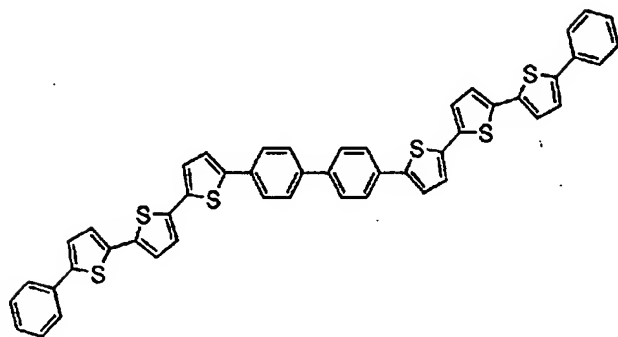
実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0519】

まず、下記の化合物と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 100nm の厚さに蒸着し、発光層とした。

【0520】

【化 152】



【0521】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0522】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0523】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は 4.5V、輝度は 400cd/m<sup>2</sup> であった。

また、この素子は、比較例のものよりも駆動電圧の上昇、輝度の低下が小さく、実施例 1~7 と同等の寿命が得られた。

【0524】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode ) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

[0519]

First, with weight ratio 90:10、 vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated rubrene derivative which becomes below-mentioned compound and light emitting center as thickness of 100 nm, made luminescent layer.

[0520]

[Chemical Formula 152]

[0521]

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made electron-implanted transport layer.

[0522]

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、 Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

[0523]

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup>, as for drive voltage as for 4.5 V、 brightness they were 400 cd/m<sup>2</sup>.

In addition, this element, rise of drive voltage and decrease of brightness are small in comparison with those of Comparative Example, lifetime which is equal to Working Example 1~7 acquired.

[0524]

<Working Example 12>

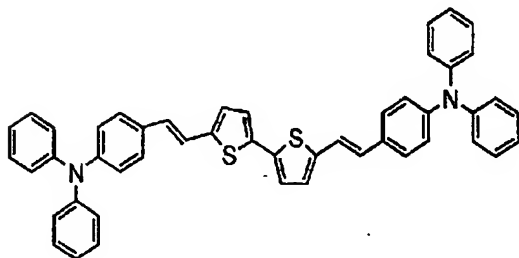
In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode ) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

【0525】

まず、下記の化合物と、発光中心となるルブレ  
ン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec  
で 100nm の厚さに蒸着し、発光層とした。

【0526】

【化 153】



【0527】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の  
厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0528】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、  
有機 EL 素子を得た。

【0529】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、  
10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、  
駆動電圧は 4.8V、輝度は 450cd/m<sup>2</sup> であった。

また、この素子は、比較例のものよりも駆動電  
圧の上昇、輝度の低下が小さく、実施例 1~7 と  
同等の寿命が得られた。

【0530】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電  
極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0531】

まず、下記の化合物と、発光中心となるルブレ  
ン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec  
で 100nm の厚さに蒸着し、発光層とした。

to vacuum vapor deposition equipment.

【0525】

First, with weight ratio 90:10、vapor deposition rate 0.2  
nm/sec vapor deposition it designated rubrene derivative  
which becomes below-mentioned compound and light  
emitting center as thickness of 100 nm, made luminescent  
layer.

【0526】

[Chemical Formula 153]

【0527】

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition  
it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made  
electron-implanted transport layer.

【0528】

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、Al was  
done vapor deposition, the organic electroluminescent  
element was acquired.

【0529】

When in this organic electroluminescent element, imparting it  
does direct current voltage, drives at constant current density  
of 10 mA/cm<sup>2</sup>, as for drive voltage as for 4.8 V、brightness  
they were 450 cd/m<sup>2</sup>.

In addition, this element, rise of drive voltage and decrease of  
brightness are small in comparison with those of Comparative  
Example, lifetime which is equal to Working Example 1~7  
acquired.

【0530】

&lt;Working Example 13&gt;

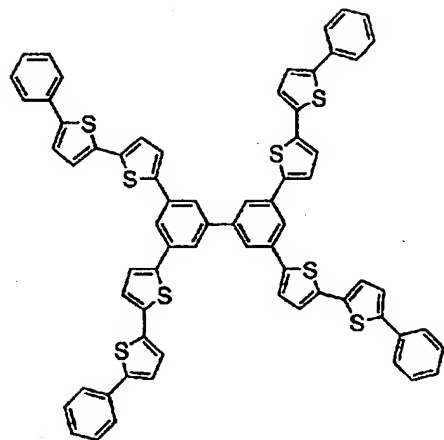
In same way as Working Example 1, film formation it did  
ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set  
to vacuum vapor deposition equipment.

【0531】

First, with weight ratio 90:10、vapor deposition rate 0.2  
nm/sec vapor deposition it designated rubrene derivative  
which becomes below-mentioned compound and light  
emitting center as thickness of 100 nm, made luminescent

【0532】

【化 154】



【0533】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0534】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0535】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は 4.7V、輝度は 420cd/m<sup>2</sup> であった。

また、この素子は、比較例のものよりも駆動電圧の上昇、輝度の低下が小さく、実施例 1~7 と同等の寿命が得られた。

【0536】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0537】

まず、下記の化合物と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 100nm の厚さに蒸着し、発光層とした。

emitting center as thickness of 100 nm, made luminescent layer.

【0532】

【Chemical Formula 154】

【0533】

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made electron-implanted transport layer.

【0534】

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

【0535】

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup>, as for drive voltage as for 4.7 V、brightness they were 420 cd/m<sup>2</sup>.

In addition, this element, rise of drive voltage and decrease of brightness are small in comparison with those of Comparative Example, lifetime which is equal to Working Example 1~7 acquired.

【0536】

&lt;Working Example 14&gt;

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

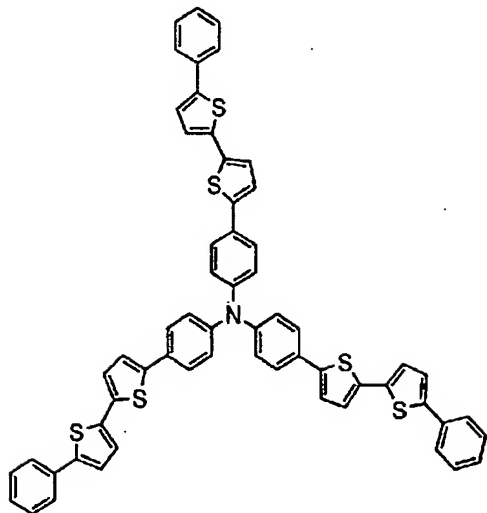
【0537】

First, with weight ratio 90:10、vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated rubrene derivative which becomes below-mentioned compound and light emitting center as thickness of 100 nm, made luminescent



【0538】

【化 155】



【0539】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0540】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0541】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は 5.0V、輝度は 500cd/m<sup>2</sup> であった。

また、この素子は、比較例のものよりも駆動電圧の上昇、輝度の低下が小さく、実施例 1~7 と同等の寿命が得られた。

【0542】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0543】

emitting center as thickness of 100 nm,made luminescent layer.

【0538】

[Chemical Formula 155]

【0539】

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made electron-implemented transport layer.

【0540】

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、 Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

【0541】

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup>, as for drive voltage as for 5.0 V、 brightness they were 500 cd/m<sup>2</sup>.

In addition, this element, rise of drive voltage and decrease of brightness are small in comparison with those of Comparative Example, lifetime which is equal to Working Example 1~7 acquired.

【0542】

&lt;Comparative Example 1&gt;

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode ) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

【0543】

まず、N,N,N',N'-テトラキス(3-ビフェニリル)ベンジジン(化合物 No.1-1)と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 100nm の厚さに共蒸着し、発光層とした。

【0544】

次いで、AlQ3 を蒸着速度 0.2nm/sec で 20nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0545】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0546】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で連続駆動させたところ、初期の駆動電圧は 6.8V、輝度は 404cd/m<sup>2</sup> であった。

そして、100 時間程度で駆動電圧が 12V 以上になり、300 時間後には絶縁破壊した。

【0547】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0548】

まず、N,N,N',N'-テトラキス(3-ビフェニリル)ベンジジン(化合物 No.1-1)を蒸着速度 0.2nm/sec で 50nm の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。

【0549】

次いで、AlQ3 と、発光中心となるルブレン誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度 0.2nm/sec で 70nm の厚さに共蒸着し、発光層とした。

【0550】

そして、実施例 1 と同様に、Li<sub>2</sub>O、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0551】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、10mA/cm<sup>2</sup> の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は 9.5V、輝度は 800cd/m<sup>2</sup> であった。

First, N,N,N',N'-tetrakis (3 -biphenyl ) benzidine (compound No.1-1 ) with, with weight ratio 90:10, vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of 100 nm, made luminescent layer.

[0544]

Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated AlQ 3 as thickness of 20 nm, made electron-implanted transport layer.

[0545]

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、 Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

[0546]

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup> continuous drive it does, as for drive voltage of initial stage as for 6.8 V、 brightness they were 404 cd/m<sup>2</sup>.

And, with 100 hour extent drive voltage became 12 V or greater, insulation breakdown did to 300 hour later.

[0547]

<Comparative Example 2>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode ) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

[0548]

First, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it designated N,N,N',N'-tetrakis (3 -biphenyl ) benzidine (compound No.1-1 ) as thickness of 50 nm, made positive hole injection transporting bed.

[0549]

Next, with weight ratio 90:10、 vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition it designated rubrene derivative which becomes AlQ 3 and light emitting center as thickness of 70 nm, made luminescent layer.

[0550]

And, in same way as Working Example 1, Li<sub>2</sub>O、 Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

[0551]

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of 10 mA/cm<sup>2</sup> , as for drive voltage as for 9.5 V、 brightness they were 800 cd/m<sup>2</sup>

さらに、この素子を  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させたところ、初期の輝度は  $3800\text{cd}/\text{m}^2$ 、駆動電圧は  $11.0\text{V}$  であり、100 時間後には駆動電圧が  $14\text{V}$  以上になった。

そして、250 時間後には駆動電圧が  $16\text{V}$  になり、輝度が半減した。

【0552】

実施例 1 と同様に、ガラス基板上に ITO 透明電極(陽極)を成膜し、真空蒸着装置にセットした。

【0553】

まず、 $\text{N,N,N',N'}$ -テトラキス(3-ビフェニリル)ベンジジン(化合物 No.1-1)と、発光中心となるルブレネ誘導体とを重量比 90:10、蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $70\text{nm}$  の厚さに共蒸着し、発光層とした。

【0554】

次いで、AIQ3 を蒸着速度  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  で  $40\text{nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。

【0555】

そして、実施例 1 と同様に、 $\text{Li}_2\text{O}$ 、Al を蒸着し、有機 EL 素子を得た。

【0556】

この有機 EL 素子に、直流電圧を印加し、 $10\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で駆動させたところ、駆動電圧は  $6.5\text{V}$ 、輝度は  $835\text{cd}/\text{m}^2$  であった。

さらに、この素子を  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  の定電流密度で連続駆動させたところ、初期の輝度は  $4200\text{cd}/\text{m}^2$ 、駆動電圧は  $7.8\text{V}$  であり、150 時間後には駆動電圧が  $12\text{V}$  以上になり、輝度が半減した。

【0557】

【発明の効果】

本発明によれば、駆動電圧が低く、高効率で、信頼性の高い有機 EL 素子を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

they were  $800\text{cd}/\text{m}^2$ .

Furthermore, this element at constant current density of  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  when continuous drive it does, as for brightness of initial stage as for  $3800\text{cd}/\text{m}^2$ , drive voltage with  $11.0\text{V}$ , 100 hour later drive voltage became  $14\text{V}$  or greater.

And, 250 hours later drive voltage became  $16\text{V}$ , brightness reduced by half.

【0552】

<Comparative Example 3>

In same way as Working Example 1, film formation it did ITO transparent electrode (anode) on the glass substrate, set to vacuum vapor deposition equipment.

【0553】

First,  $\text{N,N,N',N'}$ -tetrakis (3-biphenyl) benzidine (compound No.1-1) with, with weight ratio 90:10, vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  codeposition it designated rubrene derivative which becomes light emitting center as thickness of  $70\text{nm}$ , made luminescent layer.

【0554】

Next, with vapor deposition rate  $0.2\text{nm}/\text{sec}$  vapor deposition it designated AIQ 3 as thickness of  $40\text{nm}$ , made electron-implanted transport layer.

【0555】

And, in same way as Working Example 1,  $\text{Li}_2\text{O}$ , Al was done vapor deposition, the organic electroluminescent element was acquired.

【0556】

When in this organic electroluminescent element, imparting it does direct current voltage, drives at constant current density of  $10\text{mA}/\text{cm}^2$ , as for drive voltage as for  $6.5\text{V}$ , brightness they were  $835\text{cd}/\text{m}^2$ .

Furthermore, this element at constant current density of  $50\text{mA}/\text{cm}^2$  when continuous drive it does, as for brightness of initial stage  $4200\text{cd}/\text{m}^2$ , drive voltage with  $7.8\text{V}$ , 150 hours later drive voltage became  $12\text{V}$  or greater, brightness reduced by half.

【0557】

[Effects of the Invention]

According to this invention, drive voltage is low, with high efficiency, can acquire organic electroluminescent element where reliability is high.

[Brief Explanation of the Drawing(s)]

[Figure 1]

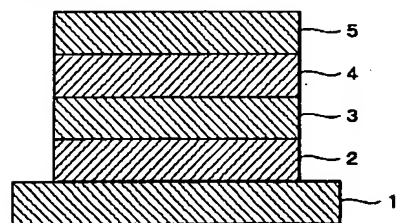
本発明の有機 EL 素子の構成例を示す概略断面図である。

【符号の説明】

- 1  
基板
- 2  
陽極
- 3  
発光層
- 4  
電子注入輸送層
- 5  
陰極

Drawings

【図1】



It is a conceptual cross section diagram which shows configuration example of organic electroluminescent element of this invention.

[Explanation of Symbols in Drawings]

- 1  
substrate
- 2  
anode
- 3  
luminescent layer
- 4  
electron-implanted transport layer
- 5  
cathode

[Figure 1]